

2023 年度

「アクチノイドの物性化学とその応用・
原子炉照射医療用 RI 製造に関する専門研究会」
報告書

京都大学複合原子力科学研究所

2024 年 3 月 7 日、8 日

専門研究会報告書「はじめに」

本研究会はアクチノイドの物性物理の理論研究者である山上先生（京産大）を所外代表者とした専門研究会です。複合研で6回目の研究会となる本研究会は、今年度は3月7日（木）と8日（金）の2日間で開催し、2022年度開始の2つのプロジェクト採択研究「アクチノイドの物性化学とその応用」、「原子炉照射医療用 RI 製造」の構成メンバーを中心に、講演者22名、参加人38名が参加されました。アクチノイドの物性物理・化学を中心とする基礎研究として物性物理学、相対論的量子化学、錯体化学から、その応用としての核燃料サイクルや放射性廃棄物の研究、核医薬の研究の報告と議論が行われました。

本研究会の主題の一つは、アクチノイド元素や希土類元素で充填されるf軌道がどのように物質構造と物性発現に関わるかというものです。本研究会の2つの課題「アクチノイドの物性化学とその応用」と「原子炉照射医療用 RI 製造」は一見無関係にも思えますが、後者ではアクチノイドや希土類元素の放射性同位体（RI）の核医薬における錯形成（ラベリング）や分離・精製を通じて研究環境が近く、研究者の交流が進んでいます。

京大複合研は2026年度のKUR停止を前に、今後の研究所の姿について活発な検討を進めています。今年度は、MKB委員会による検討状況の紹介に基づき議論を行いました。原子炉・ホットラボラトリ等の改修工事については今後検討が進む方向となっています。

今年度、複合研の研究棟の新築とリノベーションの工事があり、新たな実験室が整備された結果、研究室ではホットラボ実験の準備を実施する場所としてのコールドラボがようやく整備されました。また、複数の実験装置について今後整備できる方向となってきています。共同利用者の方々に利用いただける環境や装置について改善が少しずつですが進展しつつあります。

本研究領域と研究コミュニティの更なる発展のために貢献できればと思います。よろしくお願いいたします。

2024年3月29日

京都大学複合研 山村朝雄

「アクチノイドの物性化学とその応用」専門研究会報告書初刊行にあたり

本研究会は、京都大学複合原子力科学研究所の山村朝雄教授を中心に多くの方々のご尽力のもとで企画されたもので、令和2年2月7日（金）に京都大学複合原子力科学研究所事務棟大会議室で開催されました。本冊子はその研究会の報告書としてまとめたもので、初刊行にあたります。翌月から新型コロナウイルス感染が世界的に拡大しましたが、アクチノイド科学の基礎研究における広範囲な分野の研究者が国内外42名も参加し、本研究会が無事に終了できたことは不幸中の幸いでした。

本研究会の設立の趣旨について私なりの考えを述べさせていただきます。本研究会では、広い意味での「アクチノイド科学の基礎研究とその応用」を主眼におき、実験と理論、基礎と応用を意識した幅広い研究テーマを取り扱います。また、物理、化学、生物、工学、医学などの多様な研究分野の研究者が一堂に会する研究会でもあります。複合原子力科学研究所の共同利用者が中心となっていますが、そのアクティビティに魅かれてそれ以外の研究者も多数参加しているのが特徴です。

この研究会が、異分野の最新の研究成果を知り、新しい目でそれぞれの分野を理解し、さらに自分自身の研究にフィードバックを得るきっかけとなる場になることを、私は望みます。さらに欲を言えば、分野間で横断的で相補的な新しい研究テーマや共同研究等が創出できれば最高です。そのためには、研究会はオープンな学術交流と議論の場であることが必要ですので、今後も積極的な参加をよろしくお願いします。また、アクチノイド科学分野の特殊性で、持続的な技術・技能の継承や若手の人材育成は急務であり、本研究会への学生レベルの参加も大歓迎です。

本研究会が盛大で、オープンな活発な議論の出来る場であるように、これからもご協力をよろしくお願いします。

令和2年3月23日

京都産業大学教授 山上浩志

目次

第1章	プログラム	1
第2章	講演資料集	3
2.1	第1日目午前・セッションA	5
2.1.1	山上 浩志（京都産業大学） 「専門研究会の目標」	5
2.1.2	山村 朝雄（京大複合研） 「共同利用研究と研究環境の現状」	6
2.1.3	吉永 尚生（京大複合研） 「複合研における研究支援体制」	8
2.2	セッションB	11
2.2.1	鈴木 実（京大複合研） 「国内外の BNCT 研究の現状について」	11
2.2.2	白崎 謙次（東北大金研） 「Lu-177 分離精製の基礎検討」	15
2.3	セッションC	20
2.3.1	新居 昌至（JAEA 新試験研究炉） 「JRR-3 を活用した医療用 RI 製造」	20
2.3.2	角山 雄一（京大環境安全保健機構） 「核医学に関する前臨床研究体制の構築を目指して」	24
2.3.3	山村 朝雄（京大複合研） 「複合研 MKB による将来計画の検討状況」（共有と議論）	28
2.4	第1日目午後・セッションD	33
2.4.1	木村 寛之（金沢大） 「 ¹⁷⁷ Lu を利用した核医学治療薬の開発」	33

2.4.2	尹 鳳（長岡技科大）	
	「Extraction of Ra and target fabrication method for neutron irradiation by magnesium carbonate co-precipitation from ThO ₂ solution dissolved by thermochemical conversion」	41
2.5	セッション E	46
2.5.1	船坂 英之（アトックス）	
	「ターゲット材料として、濃縮した安定同位体を使う場合の課題」	46
2.5.2	出光 一哉（東北大金研）	
	「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」	51
2.6	セッション F	57
2.6.1	阿部 穰里（広大先進理工）	
	「アクチノイド化合物に適応可能な高精度相対論的多配置電子相関 法の開発」	57
2.6.2	神戸 振作（JAEA 先端研）	
	「金属間 U 化合物 URu ₂ Si ₂ のキラル超伝導」	61
2.7	セッション G	66
2.7.1	深澤 哲生（NFD）	
	「先進的燃料サイクル技術の開発」	66
2.7.2	島田 隆（京大複合研）	
	「アクチノイドマネジメントを備えた核燃料サイクルの研究」	71
2.7.3	矢板 毅（JAEA 物質研）	
	「マイナーアクチノイドに選択的イオン認識をする配位子の創製」	74
2.8	第2日目午前・セッション H	80
2.8.1	芳賀 芳範（JAEA 先端研）	
	「アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造 の研究」	80
2.8.2	川崎 愛理（群馬大）	
	「重元素分子の QTAIM 解析における相対論効果の検証」	84
2.9	セッション I	91

2.9.1	佐藤 哲也 (JAEA 先端研)	
	「JAEA における重・超アクチノイド化学研究の現状」	91
2.9.2	志水 陽一 (京大医病院)	
	「京大病院における Radio-theranostics の現状」	96
2.10	セッション J	101
2.10.1	野上 雅伸 (近大理工)	
	「ホスフィンオキシドとウラニルイオンとの錯形成および海水ウラン回 収への展開」	101
2.10.2	胡 湘榕 (長岡技科大)	
	「Development of Porous MoO ₂ Pellet Target for ⁹⁹ Mo/ ^{99m} Tc Generator」	106
第 3 章	参加者名簿	110
第 4 章	研究会の様子	111

第1章 プログラム

次ページに掲載

京大複合研 2023年度「アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門研究会」プログラム

日付	セッション	時間	座長	氏名	所属	タイトル
3月7日(木)	A	10:00~10:10 (10 min.)		山上 浩志	京産大理工	専門研究会の目標
		10:10~10:20 (10 min.)		山村 朝雄	京大複合研	共同利用研究と研究環境の現状
		10:20~10:30 (10 min.)		吉永 尚生	京大複合研	複合研における研究支援体制
	B	10:30~10:50 (20 min.)	山村	鈴木 実	京大複合研	国内外のBNCT研究の現状について
		10:50~11:10 (20 min.)		白崎 謙次	東北大金研	Lu-177分離精製の基礎検討
	C	11:20~11:50 (30 min.)	白崎	新居 昌至	JAEA新試験研究炉	JRR-3を活用した医療用RI製造
		11:50~12:10 (20 min.)		角山 雄一	京大環境安全保健機構	核医学に関する前臨床研究体制の構築を目指して
		12:10~12:30 (20 min.)		山村 朝雄	京大複合研	複合研の将来計画の検討状況
	D	13:00~13:20 (20 min.)	鈴木実	木村 寛之	金沢大	177Luを利用した核医学治療の開発
		13:20~13:40 (20 min.)		尹 鳳	長岡技科大	Extraction of Ra and target fabrication method for neutron irradiation by magnesium carbonate co-precipitation from ThO2 solution dissolved by thermochemical conversion
	E	13:50~14:10 (20 min.)	矢板	舩坂 英之	アトックス	ターゲット材料として、濃縮した安定同位体を使う場合の課題
		14:10~14:40 (30 min.)		出光 一哉	東北大金研	燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発
3月8日(金)	F	14:50~15:10 (20 min.)	佐藤	阿部 穰里	広大先進理工	アクチノイド化合物に適応可能な高精度相対論的多配置電子相関法の開発
		15:10~15:30 (20 min.)		神戸 振作	JAEA 先端研	金属間U化合物URu2Si2のキラル超伝導
	G	15:40~16:00 (20 min.)	芳賀	深澤 哲生	NFD	先進的燃料サイクル技術の開発
		16:00~16:20 (20 min.)		島田 隆	京大複合研	アクチノイドマナネジメントを備えた核燃料サイクルの研究
		16:20~16:40 (20 min.)		矢板 毅	JAEA物質研	マイナーアクチノイドに選択的イオン認識をする配位子の創製
	H	9:00~9:20 (20 min.)	山上	芳賀 芳範	JAEA先端研	アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造の研究
		9:20~9:50 (30 min.)		川崎 愛理	群馬大	重元素分子のQTAIM解析における相対論効果の検証
	I	10:00~10:30 (30 min.)	芳賀	佐藤 哲也	JAEA 先端研	JAEAにおける重・超アクチノイド化学研究の現状
		10:30~10:50 (20 min.)		志水 陽一	京大医病院	京大病院におけるRadio-theranosticsの現状
	J	11:00~11:20 (20 min.)	山村	野上 雅伸	近大理工	ホスフィンオキシドとウランイオンとの錯形成および海水ウラン回収への展開
		11:20~11:40 (20 min.)		胡 湘榕	長岡技科大	Development of Porous MoO2 Pellet Target for 99Mo/99mTc Generator

第2章 講演資料集

講演者のご承諾を得て、ここに講演資料を収録します。

(敬称略)

2.1 第1日目午前・セッションA

2.1.1 山上 浩志（京都産業大学）

「専門研究会の目標」

Users meeting on Condensed-matter Chemistry in Actinides and their Applications

First Meeting : 2020年2月7日 京大複合研 事務棟大会議室 9:35-9:50
Second Meeting: 2021年2月10日 zoom会議 9:35-9:50
Third Meeting : 2022年3月3日-4日 zoom会議 10:00-15:00
Fourth Meeting : 2023年3月2日-3日 hybrid会議 13:00-17:10, 8:00-15:00
Fifth Meeting : 2024年3月6日-7日 hybrid会議 10:00-15:00, 9:00-11:40

専門研究会の目標 (Goals of Specialized Research Groups)

「アクチノイドの物性化学とその応用」 の開催趣旨

京都産業大学 理学部 物理科学科 山上 浩志
(Kyoto Sangyo University, Hiroshi Yamagami)

本研究会の趣旨 (Perspectives of this meeting)

平成31年度 京都大学複合原子力科学研究所研究会の公募に採択

趣旨：本研究会は、**複合原子力科学研究所の共同利用の一環として行うもので、
複合原子力科学研究所における研究及び原子炉に関するテーマについて開催**

「専門研究会」＝テーマにこだわらない一般の研究会で、
プロジェクト研究に向けた研究課題を提案する研究会も含む。



- (提案)：(1) 研究テーマとして、**広い意味でのアクチノイドの物性化学（科学）の基礎研究とその応用**
(2) 実験と理論、および基礎と応用を意識した研究
(3) 物理、化学、生物、工学、医学などの様々な**異分野の横断的および相補的研究および創出**
(4) **人材育成**、および**技術技能の継承**に向けた施策や枠組み
(5) オープンな交流の場を提供し、**情報交換と学術的議論**

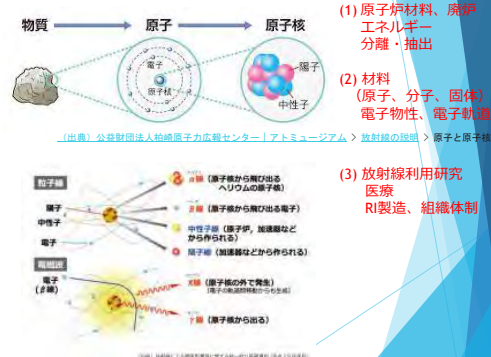
注意事項：

- 講演には共同利用研究者（所員・学生を含む）の発表が半数程度含まれること。
- 講演において共同利用研究成果または今後の研究計画等について報告
- 共同利用研究活性化のための意見・要望等をまとめる総合討論時間を設ける。

会議のスケジュール (Meeting Schedule)

日次	セッション	時間	発表者	発表題目	発表内容
第1日目(2月7日)	A	9:35-9:50	山上 浩志	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
B	10:00-10:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
C	10:15-10:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
D	10:30-10:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
E	10:45-11:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
F	11:00-11:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
G	11:15-11:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
H	11:30-11:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
I	11:45-12:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
J	12:00-12:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
K	12:15-12:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
L	12:30-12:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
M	12:45-13:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
N	13:00-13:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
O	13:15-13:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
P	13:30-13:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
Q	13:45-14:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
R	14:00-14:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
S	14:15-14:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
T	14:30-14:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
U	14:45-15:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
V	15:00-15:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
W	15:15-15:30	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
X	15:30-15:45	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
Y	15:45-16:00	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用
Z	16:00-16:15	佐々木 浩一	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用	アクチノイドの物性化学とその応用

アクチノイド（広義：放射性物質）科学研究のターゲット



First Meeting : 2020年2月7日 京大複合研 事務棟大会議室 9:35-9:50

共同利用研究活性化のための意見・要望等の総合討論

物理、化学、生物、工学、医学などの様々な異分野の横断的および相補的研究および創出（例えば、実験と理論、基礎と応用、物理と化学、医学と工学など）

人材育成、および技術技能の継承に向けた施策や枠組み（原子力をキーワードにした場合）

オープンな交流の場を提供し、情報交換と学術的議論（原子力関連研究に関して、研究者は分散しているので、共同研究体制が必要）

アフターコロナ： エネルギー問題、医療関連、アクチノイド科学

ご静聴ありがとうございます！

オープンで活発な議論をお願いします。
(他分野に対する純粋な好奇心と理解度の向上)

2.1.2 山村 朝雄（京大複合研）

「共同利用研究と研究環境の現状」

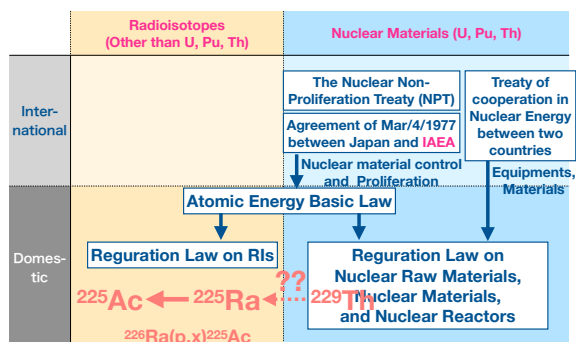
共同利用研究と研究環境の現状

京大複合研 アクチノイド物性化学研究分野
山村朝雄

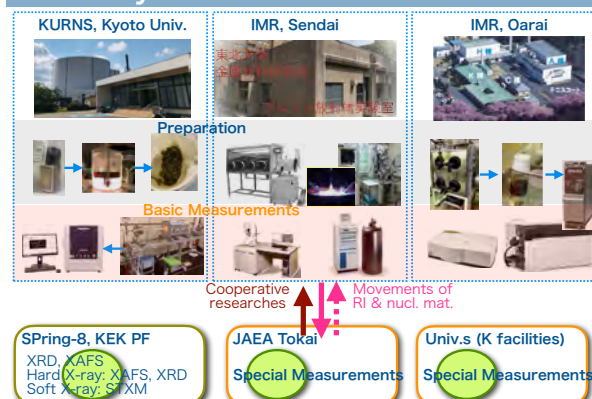
アクチノイド物性化学の特徴

- ・ 物性化学の目的
 - ・ 対象とする物質の結晶学的及び電子の構造を理解し、またその特性を予測すること
- ・ アクチノイドの物性化学の特徴
 - ・ 電子間のクーロン相互作用の効果が強い、いわゆる強相関電子系の物質群
 - ・ アクチノイドは、内遷移元素として電子が充填される5f軌道の中間的な遮蔽により、特徴的な化学的・電子の物性を有する
 - ・ 3d、4f電子系に比べると研究の歴史が浅い
 - ・ 超伝導と強磁性の共存など、予期せぬ新現象の発見が実験的理論的研究を刺激
- ・ 波及効果
 - ・ 核燃料サイクルの高度化
 - ・ 放射性廃棄物の低減、特にマイナーアクチノイド（Np、Am、Cm）の管理法
 - ・ デブリ物性の分析
 - ・ アルファ放射体核医薬

Radioactive materials are regulated under two different laws in Japan



Eco system of Actinides research



プロジェクト採択研究：アクチノイドの物性化学と応用（P4）

2019-2021年度、2022-2024年度

課題番号	代表者	タイトル
R6P4-1	芳賀 芳範 (JAEA)	アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造の研究
R6P4-2	阿部 雅里 (広島大学)	アクチノイド化合物に適応可能な相対論的多配置電子相関法の開発
R6P4-3	中瀬 正彦 (東工大)	新規フタロシアニン誘導体合成とその置換基修飾による軽アクチノイドイオン認識と諸物性との相関
R6P4-4	白崎 謙次 (東北大学)	酸化トリウムに含まれる子孫核種放射能の定量方法の検討
R6P4-5	神戸 操作 (JAEA)	デブリNMR解析のためのアクチノイド化合物の電子物性
R6P4-6	石川 直人 (阪大)	アクチノイド5f電子系と光励起有機π電子系との間の新しい相互作用の探索
R6P4-7	鈴木 達也 (長岡技術大)	核種製造のためのアクチノイドおよびその壊変生成物の抽出・分離に係る基礎データ収集
R6P4-8	野上 雅伸 (近畿大)	アクチニルイオン配位性アミド化合物の錯形成挙動に関する研究
R6P4-9	小林 徹 (JAEA)	燃料デブリの経年変化に関する研究

プロジェクト採択研究：原子炉照射医療用 RI 製造（P3）

2022-2024年度

課題番号	代表者	タイトル
R6P3-1	木村寛之 (金沢大学)	腫瘍を標的としたラジオセラノスティクス創薬と臨床応用
R6P3-2	志水 陽一 (京都大学)	免疫療法作用による ^{177}Lu 標識RI治療薬を用いたがん治療への影響評価
R6P3-3	荒山 幸信 (福島県立医科大学)	核医学治療用β-放射体 ^{177}Lu の原子炉製造および標識薬の開発
R6P3-4	白崎 謙次 (東北大学)	^{177}Lu 自動製造のためのカラム分離システム開発

Our meeting background: domestic and international meetings

Fiscal Year	Classification	Conference Name
2008	IMR, Oarai meeting (Tohoku Univ.)	Actinide element lab. user's meeting
2009		Oarai user's meeting (Actinides)
2008		Sci. Res. Grants Fundamental Research(S) meeting
2009		
2010		Oarai user's meeting including LARE
2011		
2013	IMR LARE meeting (Tohoku Univ., Sendai)	Collaboration of LARE user's mtg with Sci. Res. Grants Fundamental Research(S) mtg
2014		
2015		7th LARE user's meeting
2016		8th LARE user's meeting
2017		Collaboration of Workshop "Science and Technology of Actinide Elements" IMR, Tohoku Univ. with 9th LARE user's mtg
2017		Actinides-2017 (Sendai)
2018	International Conf.	
2018	Kumatori mtg.	Topical meeting on Condensed-matter Chemistry on Actinides
2019	Official mtg.	
2020	Kumatori mtg. (International mtg.)	
2021		
2022	Official mtg.	Users meeting on "Condensed-matter Chemistry in Actinides and their Applications / Production of medical RIs by Reactor Irradiation"
2023		

* mtg in FY 2012 was not planned because of the damages due to the Tohoku earthquake (March 11, 2011)

本研究会の採択について

研究会名：アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用 RI 製造に関する専門研究会

審査結果：採択（採択番号：R6S03）

審査評点：3.73 点（審査評点については、以下を参照下さい。）

審査コメント：

・研究会は全年度も継続的に開催することが必要と考える。
・関連研究会は継続的に開催されており、アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用 RI 製造に関する幅広い内容の情報交換の場である。また医療用、長寿命産業物処理など施設サイトの今後の開けや必要なホットラボの機能についても議論がなされる予定である。
・量子化学計算や計算相図の適用が求められていることとホットラボの機能、つまり実験、との関係がよく分かりませんでした。
・「ポスト KJRR 時代」に向けて核燃料・RI 利用の研究に当たって、ホットラボラトリ (HL) の機能等の議論を行い、関連研究分野における施設サイトのあり方を示し、議論を行って欲しい。
・結核学の分野で今後の医療用 RI の製造に関する動向は注目されている。

委員会コメント：開催にあたっては審査コメントを考慮した実施となるよう心掛けて下さい。

旅費配分額：30 万円

開催予定日：2 月 10 日

開催責任者：【所外】京都産業大学 山上 浩志

【所内】山村 朝雄

研究棟

物理実験室
(コールド)

ホットラボ

2024年度導入予定

SEM+EDX



日立ハイテック SU3800



EDX (〜Cf)

ICP-MS



Agilent 7900

2.1.3 吉永 尚生（京大複合研）

「複合研における研究支援体制」



ホットラボ



RI製造のための施設・装置



A1 ホットセル



A2 フード
B10 Lu-177分離精製装置

アクチノイド実験のための装置



B3 粉末XRD



B7 顕微ラマン分光

アクチノイド実験のための装置



B6 昇華精製装置



B10 還元電気炉

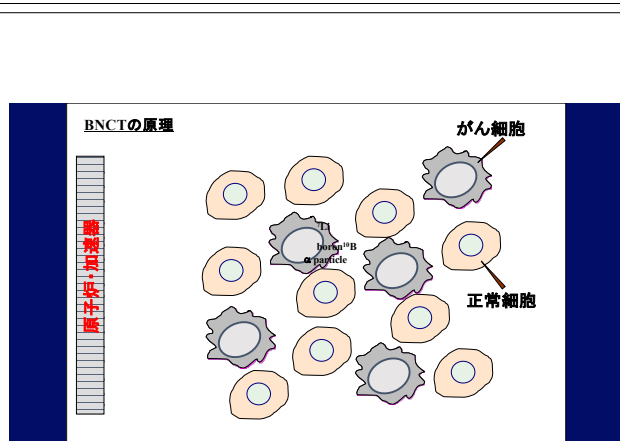
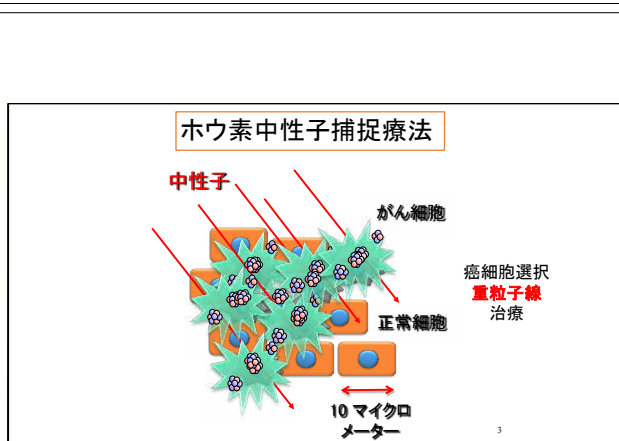
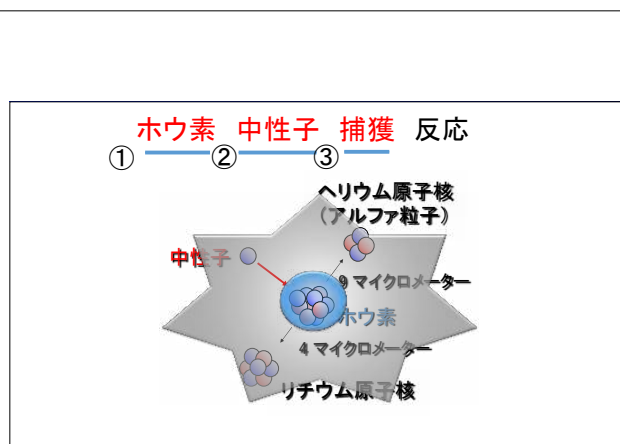
京大における研究支援体制の見直し

- 来年度から技術職員の定員は大学の一元管理の下になります。
- 研究所は過渡期を迎え、技術室の業務内容が少しずつ変化すると予測されています。
- 2年後のKURの運転停止及び廃止措置、KUCAの低濃縮燃料の再稼働、新しい中性子源の技術支援、先生方の研究支援等
- 技術室は、業務を通して技術職員を育成し、研究所の安全管理・教育研究に満足できる技術支援を目指しています。

2.2 セッションB

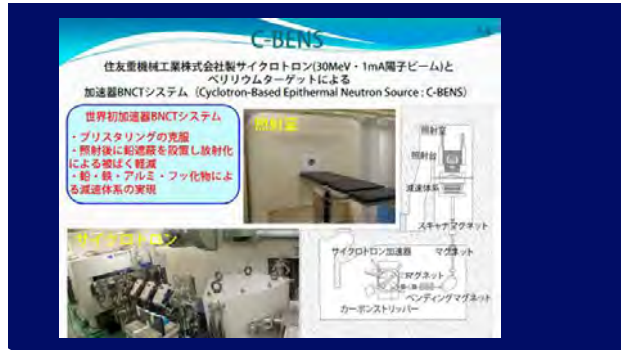
2.2.1 鈴木 実（京大複合研）

「国内外の BNCT 研究の現状について」



The diagram illustrates the BNCT system components, divided into three main sections:

- 陽子加速装置 (Proton Acceleration Device):** Shows a spiral representing the "サイクロトロン" (Cyclotron) and a "陽子ビーム" (Proton Beam) being directed towards a "ペリカルムターゲット" (Pericarm Target).
- 陽子ビーム輸送装置 (Proton Beam Transport Device):** Shows the beam passing through a "スリット系" (Slit System) and a "スクリーン" (Screen).
- 中性子照射装置 (Neutron Irradiation Device):** Shows the beam entering a " moderator " (moderator) and a " reflector " (reflector), which then directs the beam towards a " patient " (patient) lying on a " treatment bed " (treatment bed).



Total Facilities:	Accelerator-based facilities	Medical Cyclotron	Cyclotron for Accelerator	Linear Accelerator	Other facilities
20					

Total Dose Rate: 14

Facilities:

- 1. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 2. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 3. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 4. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 5. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 6. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 7. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 8. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 9. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 10. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 11. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 12. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 13. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 14. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 15. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 16. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 17. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 18. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 19. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
- 20. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

世界のBNCT施設

施設名	施設所在地	施設稼働状況	施設稼働開始年	施設稼働終了年	施設稼働回数
1. 東京 BNCT 施設	東京都文京区	稼働中	2015		1
2. 大阪 BNCT 施設	大阪府大阪市	稼働中	2015		1
3. 名古屋 BNCT 施設	愛知県名古屋市	稼働中	2015		1
4. 福岡 BNCT 施設	福岡県福岡市	稼働中	2015		1
5. 札幌 BNCT 施設	北海道札幌市	稼働中	2015		1
6. 仙台 BNCT 施設	宮城県仙台市	稼働中	2015		1
7. 新潟 BNCT 施設	新潟県新潟市	稼働中	2015		1
8. 金沢 BNCT 施設	石川県金沢市	稼働中	2015		1
9. 富山 BNCT 施設	富山県富山市	稼働中	2015		1
10. 山梨 BNCT 施設	山梨県山梨市	稼働中	2015		1
11. 長野 BNCT 施設	長野県長野市	稼働中	2015		1
12. 岐阜 BNCT 施設	岐阜県岐阜市	稼働中	2015		1
13. 静岡 BNCT 施設	静岡県静岡市	稼働中	2015		1
14. 愛媛 BNCT 施設	愛媛県愛媛市	稼働中	2015		1
15. 高松 BNCT 施設	高松市高松市	稼働中	2015		1
16. 徳島 BNCT 施設	徳島県徳島市	稼働中	2015		1
17. 香川 BNCT 施設	香川県香川県	稼働中	2015		1
18. 岡山 BNCT 施設	岡山県岡山市	稼働中	2015		1
19. 広島 BNCT 施設	広島県広島市	稼働中	2015		1
20. 山口 BNCT 施設	山口県山口市	稼働中	2015		1
21. 熊本 BNCT 施設	熊本県熊本市	稼働中	2015		1
22. 大分 BNCT 施設	大分県大分市	稼働中	2015		1
23. 宮崎 BNCT 施設	宮崎県宮崎市	稼働中	2015		1
24. 鹿児島 BNCT 施設	鹿児島県鹿児島市	稼働中	2015		1
25. 沖縄 BNCT 施設	沖縄県那覇市	稼働中	2015		1

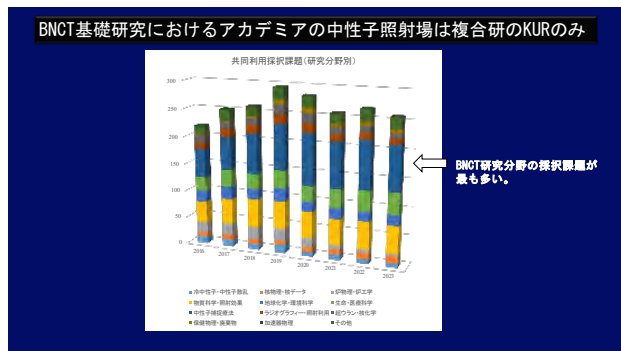


費用の内訳(人の場合)

- 照射技術料
 - 238,500円(2,385,000円)
 - 照射技術料 : 187,500円
 - 適応判定 : 40,000円
 - 医学管理加算 : 10,000円
 - 照射固定具加算 : 1,000円
- 薬剤費 : 300mlパック
 - 444,215円×4 (60kg成人:4パック使用)

BPA (500mg/kg) が投与量、4/5を照射前2時間に点滴投与、残り1/5を中性子照射中に投与。

**ホウ素(BPA)薬剤:
ステボロニン点滴静注
パック9000 mg/300 mL**



中性子捕捉療法(BNCT)の 獣医学領域への展開



京都大学複合原子力科学研究所
粒子線腫瘍学研究センター
鈴木 実

獣医療でBNCTを実施する際の問題点

- ①治療施設
- ②費用
- ③放射化

問題点 (①治療施設)

治療施設について

京都大学複合原子力科学研究所では動物や細胞に照射可能な医療機器として医療承認を得ている加速器
(開当BNCT共済医療センター、南東北BNCT研究センターで放射線BNCTの動物で使用中) が利用可能
(※) 京都大学複合原子力科学研究所に大阪公立大学常盤町センターの加速器施設を整備

大阪公立大学常盤町センター



・診療の診断
・治療に使用CT撮影

平均15分ほど

京都大学複合原子力科学研究所



・BNCT実施
・照射後立退

医療機器として承認済みの治療器での治療が可能

問題点 (②費用)

獣医療に適応した場合。

- ・加速器の費用については既に導入済みの機器を用いるため不要。
- ・ホウ素薬剤の点滴費用(約25000円/kg)。
- ・麻酔費、入院費、治療計画代の管理費用



ホウ素薬剤:
ステボロニン 点滴剤 2000 mg/300 mL

25000円×体重(kg) + 管理費 + 人件費

費用に関しても現実的(と考えられる)

問題点 (③放射化)

・放射化

伴侶動物の放射化



現状ではBNCT後に管理区域外に出ることが出来ない
(放射性廃棄物扱いになる可能性がある)

管理区域外に出すための基準を示す必要がある

BNCT後の動物の放射化による周囲への
影響について検討が必要

質疑応答

Q：アメリカでは BNCT は実施されていない？

A：アメリカではない。湘南藤沢病院に入っている加速器はアメリカのベンチャーの製品（ロシア製の加速器がアメリカで組み立てられたもの）です。

Q：これから入るのはアジアに集中する背景は？

A：日本での BNCT の実施例は圧倒的に我々の京大炉が多かった。アジアでのコミュニティー（韓国、台湾等）が京大炉と近いというバックグラウンドがあるのではないか？中国では原子炉 BNCT が可能な病院も造られている。

Q：理想的な薬品とは例えばどのようなものか？

A：理想的というのは2つの観点がある。一つは選択性が高い薬剤、すなわち腫瘍組織に高く選択してかつ正常組織に集積しない薬剤が必要。加速器や X 線には選択性がなく満遍なくあたるので、正常組織ではなく腫瘍を選ぶために薬剤の選択性が不可欠である。もう一つは、入射粒子が 108 個程度で一個当たる確率現象を起こさせるため、薬剤を患者さんに対して 25g 入れる。普通の薬が mg なのでべらぼうな量で、砂糖水のような安全性が必要。6 時間程度かけないと十分な衝突が生じない。選択性が現状 1:3 位、深いところではその前に正常組織もあるという難しさもある。第 1 の理想を満たすドラッグデリバリーは難しいので、薬剤を直接打ち込む試みもある。その点では木村先生とも共同研究が進行中。

2.2.2 白崎 謙次（東北大金研）

「Lu-177 分離精製の基礎検討」

IMR

2023年度 アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射医療用同位体製造に関する専門研究費
京都大学複合原子力科学研究所

Lu-177分離精製の基礎検討

東北大金属材料研究所
白崎 謙次
金沢大学 疾患モデル総合研究センター
木村 寛之
京都大学 複合原子力科学研究所
山村 朝雄

Research for Materials Research, Tohoku University

IMR

内容

1. ^{177}Lu の医学利用、製造方法
2. 本研究の目的
3. 実験方法
4. 結果
 1. 天然Ybを使用した分離試験
 2. 濃縮 ^{176}Yb を使用した分離試験
5. 結論

Research for Materials Research, Tohoku University

IMR

標的Ri療法における ^{177}Lu

❖ ^{177}Lu の放射性医薬品としての利用

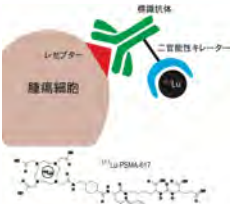


Fig. 標的Ri療法の概略と ^{177}Lu 標識薬剤の例

Copyright protected image

C. Muller, et. al., J. Nucl. Med., (2017) 915-965.

Research for Materials Research, Tohoku University

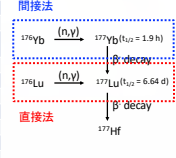
IMR

^{177}Lu の製造方法1

❖ ^{177}Lu の製造法・・・主に原子炉での中性子照射による核反応

Table 天然Lu、Ybにおける核種と量、及び中性子との核反応に関するデータ

Elements	Target isotope	Natural Abundance	σ (barn)	Activation products	Decay mode	Half lives	Decay products
Lu	^{175}Lu	97.41%	16.7	^{176}Lu	β^- , γ	3.66 h	^{176}Hf
	^{176}Lu	2.59%	6.6	^{176}Lu	β^- , γ	4×10^{10} y	^{176}Hf
			2.8	^{177}Lu	β^- , γ & IT	160.4 d	^{177}Hf (78.6%) ^{177}Lu (21.4%)
			2090	^{177}Lu	β^- , γ	6.65 d	^{177}Hf
Yb	^{169}Yb	0.13%	2300	^{169}Yb	EC	32.02 d	^{169}Tm
	^{170}Yb	3.04%	9.9	^{170}Yb	Stable		
	^{171}Yb	14.28%	58.3	^{171}Yb	Stable		
	^{172}Yb	21.83%	1.3	^{172}Yb	Stable		
	^{173}Yb	16.13%	15.5	^{173}Yb	Stable		
	^{174}Yb	31.83%	63	^{174}Yb	β^- , γ	4.18 d	^{174}Lu
	^{175}Yb	12.76%	2.85	^{175}Yb	β^- , γ	1.9 h	^{175}Lu



間接法

直接法

Research for Materials Research, Tohoku University

IMR

^{177}Lu の製造方法2

❖ 間接法により製造した ^{177}Lu の精製法

- ✓ セメンテーション+陽イオン交換法
- ✓ 電解法
- ✓ 液体膜抽出法
- ✓ YbSO_4 沈殿法
- ✓ 抽出クロマトグラフィ
- ✓ 逆相イオン対液体クロマトグラフィ
- ✓ 電解法+セメンテーション etc.

Copyright protected image

A. Kim, K. Choi, J. Radioanal. Nucl. Chem., 331(2022)1451-1457.

Research for Materials Research, Tohoku University

IMR

2. 本研究の目的

❖ 国産 ^{177}Lu の製造（安定供給）に向けた基礎検討として...

- ✓ 抽出カラムクロマトグラフィを用いた核種分離を検証
- ✓ 天然Yb試料と濃縮 ^{176}Yb 試料の2種類を用いて Yb^{3+} 、 Lu^{3+} の動態をトレース
- ✓ CZT検出器を用いたin-situ測定の可能性を探る

Copyright protected image

Copyright protected image

多段式抽出カラムクロマトグラフィ

<http://www.sowa-trading.co.jp/doc/TK211TK212TK213Resin.pdf>

Research for Materials Research, Tohoku University

3. 実験方法1

❖ 照射試料の調製

1. 片側が閉じた石英管に Yb_2O_3 を秤量して入れる
2. 石英ウールを石英管の開口部に詰める
3. 石英管をアルミ箔で梱包
4. アルミ管に封入



Fig. 本実験に使用した天然 Yb_2O_3 及び濃縮 $^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ (左)、照射試料 (中) 及びアルミ管封入の様子 (右)

❖ 照射条件: KUR(Hydro) 1MW 24h

❖ 照射試料: 0.5 mg Yb_2O_3 (天然Yb又は濃縮 ^{176}Yb)

❖ 冷却期間: 約2週間

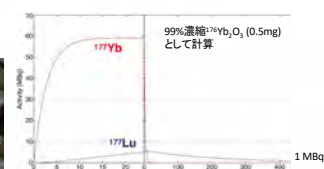


Fig. 照射及び冷却期間における ^{177}Yb と ^{177}Lu の増減

Institute for Materials Research, Tohoku University

7

3. 実験方法2

❖ 照射試料の溶解

1. 石英管からアルミ箔、石英ウールを外す
2. 石英管内をconc. HNO_3 で洗い、洗浄水はパイアルに移す
3. 溶液を蒸発乾固した後、conc. HNO_3 : H_2O_2 =1:1 溶液を加え、再加熱、再度蒸発乾固

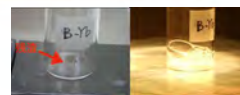
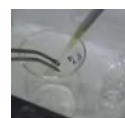


Fig. 蒸発乾固後 (左)、過酸化水素処理 (右上)、フィルターを通 (右) の様子



4. 乾固物を0.1 M HNO_3 に溶解し、フィルター (20-45 μm) でろ過
5. 濾液を乾固した後、0.1 M HNO_3 (1 mL) に溶解、10 μL をGe測定用試料としてPPサンブルチューブに移す

Fig. 石英管を洗う様子

Institute for Materials Research, Tohoku University

8

3. 実験方法3

❖ カラム分離システム

- ✓ 定容量ポンプ
- ✓ LN2カラム (50cm, 50°C)
- ✓ CZT検出器



Fig. カラム分離試験の様子 (左) と CZT検出器 (右)

❖ カラム分離手順

1. コンディショニング (0.1 M HNO_3 , 75 mL)
2. 着点 (0.1 M HNO_3 , 0.75 mL)
3. 洗い (0.1 M HNO_3 , 7.5 mL)
4. 流し (1.5 M HNO_3 , 85 mL)
5. 溶離 (4 M HNO_3 , 20 mL)

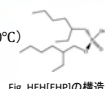


Fig. HEH[EHP]の構造式



Fig. Ge半導体検出器 (左) と試料測定の様子 (右)

Institute for Materials Research, Tohoku University

9

4. 照射試料中の ^{177}Lu と放射性Yb

❖ 天然Yb試料

Table 試料中の核種と存在量

Activity (Bq)

^{177}Lu ^{176}Yb ^{177}Yb

$3.1 \pm 0.3 \times 10^4$ $2.43 \pm 0.02 \times 10^4$ $2.02 \pm 0.02 \times 10^4$

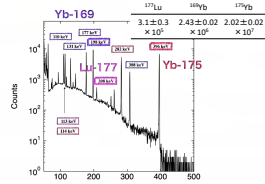


Fig. 天然Yb試料のγ線スペクトル

Institute for Materials Research, Tohoku University

10

❖ 濃縮 ^{176}Yb 試料

Table 試料中の核種と存在量

Activity (Bq)

^{177}Lu ^{176}Yb ^{177}Yb

$9.3 \pm 0.1 \times 10^4$ $3.1 \pm 0.1 \times 10^4$ $5.3 \pm 0.5 \times 10^4$

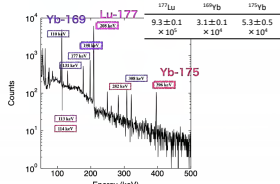


Fig. 濃縮 ^{176}Yb 試料のγ線スペクトル

Institute for Materials Research, Tohoku University

11

4.1 天然Ybを使用した分離実験1

❖ カラム実験時のCZT検出器を用いたin-situ測定結果

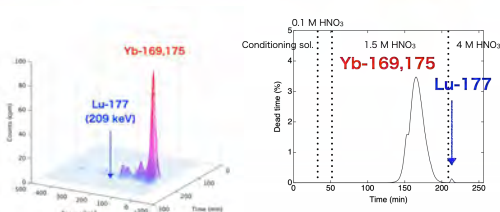


Fig. 天然Yb試料を用いたカラム実験時のγ線スペクトル変化

Institute for Materials Research, Tohoku University

12

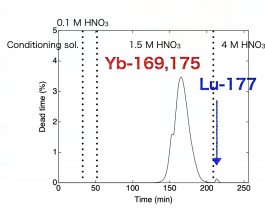


Fig. 天然Yb試料を用いたカラム実験時のCZT検出器のDT変化

4.1 天然Ybを使用した分離実験2

❖ 天然Yb試料の溶離フラクションのGe測定結果

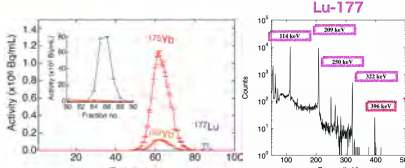


Fig. 天然Yb試料を用いたカラム実験における溶離曲線

Institute for Materials Research, Tohoku University

13

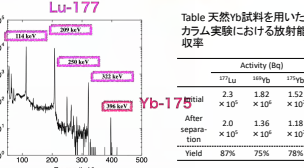


Fig. フラクションNo.86のγ線スペクトル

Table 天然Yb試料を用いたカラム実験における放射能、収率

	Activity (Bq)	^{177}Lu	^{176}Yb	^{177}Yb
Initial	2.3	1.82	1.52	1.52×10^4
After separation	2.0	1.36	1.18	1.18×10^4
Yield	87%	75%	78%	

IMR 4.2 濃縮¹⁷⁶Ybを使用した分離実験1

❖ カラム実験時のCZT検出器を用いたin-situ測定結果

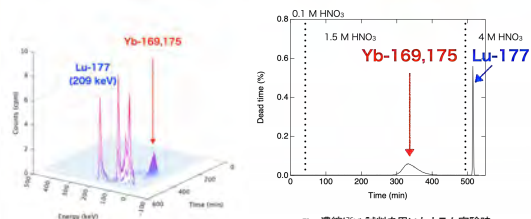


Fig. 濃縮¹⁷⁶Yb試料を用いたカラム実験時のγ線スペクトル変化

Fig. 濃縮¹⁷⁶Yb試料を用いたカラム実験時のCZT検出器のDT変化

Institute for Materials Research, Tohoku University

11

IMR 4.2 濃縮¹⁷⁶Ybを使用した分離実験2

❖ 濃縮¹⁷⁶Yb試料の溶離フラクションのGe測定結果

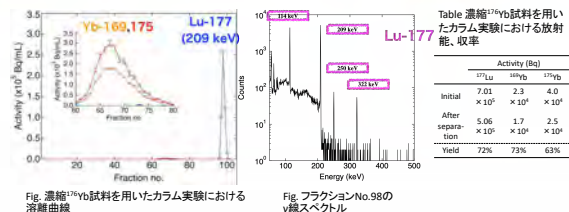


Fig. 濃縮¹⁷⁶Yb試料を用いたカラム実験における溶離曲線

Fig. フラクションNo.98のγ線スペクトル

Institute for Materials Research, Tohoku University

12

IMR 5 結論

❖ 国産¹⁷⁷Luの製造(安定供給)に向けた基礎検討として...

- ✓ 天然Yb試料、濃縮¹⁷⁶Yb試料ともにYb³⁺、Lu³⁺の分離が確認できた(文献通り)
- ✓ in-situ測定が放射性Ybと¹⁷⁷Luの分離試験に有効であることが示せた
- ✓ 試料溶解時の回収率を求めていく必要がある
- ✓ フラクションとして回収した試料中の安定Ybの定量を実施したい...ICP-MS等

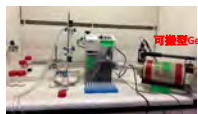


Fig. 濃縮¹⁷⁶Yb試料を用いたカラム実験

❖ 謝辞

福島県立医大 鷺山先生のご助言、ご助力に感謝します
また、吉永さん、奥村さんを始めとして京大複合研の職員の方々には実験準備を始め、ありとあらゆる場面で大変お世話になりました

ご清聴ありがとうございました

Institute for Materials Research, Tohoku University

13

質疑応答

Q：研究のスタート地点ですが、Lu の同位体を作る動機づけ、利点は何か？

A：直接法では Lu-175 が 97% と以上に多く、Lu-177 に変換する Lu-176 は核反応断面積は大きいですが 3% しかない。このため、直接法では大量のキャリアで標識率が下がる欠点がある。Yb の濃縮同位体を使う間接法では、キャリアフリーで標識率が低下しない利点がある。

Q：Lu の同位体を治療に使う理由は何か？

A：半減期が適度に短いことが理由。他の核種は半減期が長いので適さない。

2.3 セッションC

2.3.1 新居 昌至（JAEA 新試験研究炉）

「JRR-3 を活用した医療用 RI 製造」



アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門研究会

JRR-3を活用したRI製造の推進

令和6年3月7日
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
新試験研究炉推進室

新居 昌至

1



JAEAのミッション

原子力と放射線の利用促進

原子力安全 & 核セキュリティ 原子力科学技術

先端科学 材料科学

計算科学 バックエンド技術

人材育成

Research reactor Critical assembly Supercomputer Hot laboratory Accelerator

原子力科学技術を通じて、人類社会の福祉と繁栄に貢献する

Decommissioning of TEPCO FDNPS Improvement of safety of LWR Nuclear transmutation Waste management Advanced science Industrial application

2



機構が目指す研究開発の3つの柱

原子力機構のビジョンの達成
「ニュークリア × リニューアブル」で拓く新しい未来

社会に価値を還元

Synergy
ウラン蓄電池の開発

Sustainable
核セキュリティ
高レベル放射性廃棄物の減容・有価物回収・再資源化

Ubiquitous
原子力利用の多様化に向けた研究開発

3



原子力科学研究部門の設定目標（4本の柱）

放射性廃棄物の再資源化・新エネルギーの創出

Partitioning
Option
High-level vitrified waste
Low-level waste
Transmutation by FR/ADS
RE, Mo
Power generation by heat and radiation
Utilization of elements
Lower heat generation
Shorter half-life
各種元素の分離・核変換技術及び再資源化技術の確立

R I 製造の推進

JRR-3
JRR-3を利用して医療用RIを国内製造する技術を確認し、安定的な核医学診断体制の構築に寄与

Nuclear for Renewable (N4R) の推進

3-PAc
Neutron imaging
J-MAX 3 kA
燃料電池、モーター、水素インフラ等の機能性向上に貢献する中性子・放射光計測技術を開発・高度化し、産業・宇宙等に提供

革新的原子力システムに向けたデジタルツインの推進(DX)

Multi-scale Simulation
Data in Real space
新型軽水炉から革新炉までの全ての許認可で要求される安全性等に対する実証を、V&Vを実施した数値計算で相関図化する手法を確立し、事業者（メーカー）に提供

4



JRR-3

供用運転再開（令和3年7月12日）

世界トップレベルの高性能研究炉として中性子ビーム実験（中性子ラジオグラフィ、中性子散乱実験、即発ガンマ線分析）や中性子照射（ラジオアイソトープの製造）に利用されている。

リチウムイオン電池の構造解析 鉄筋コンクリートの付着力評価、内部観察

エンジン内部の潤滑油の高速度撮影 医療用RI（Au-198、Ir-192）の製造

現在、機構で稼働している原子炉の中で、RI製造できる唯一の試験研究炉である。

5



JRR-3の照射設備の概要

上部遮へい体 原子炉ノール 照射キャプセル

中性子源遮蔽 冷却設備 重水タンク 炉心部 一次冷却系配管 制御棒駆動機構

照射孔配置図

設備	照射孔	照射時間	Φ_{th} (n/cm ² /s)	用途
水力照射設備	HR-1 HR-2	10分 ～ 19分	9.5×10 ¹³	RI製造 放射化分析
気流照射設備	PR-1 PR-2 PR-3	5分 ～ 20分	5.0×10 ¹³	放射化分析
垂直照射設備	VR RG-1～4 BR-1～4	19分～ 2.0～3.0×10 ⁴	2.0～3.0×10 ¹⁴	燃料・材料照射 RI製造
回転照射設備	DR-1	19分～	3.0×10 ¹³	燃料・材料照射

RI製造には水力照射設備と垂直照射設備を使用

6

JAEA ラジオアイソトープ (RI) 製造棟

RI 製造棟は

- 1964 年に竣工。大量の RI 製造が可能な国内唯一の施設。
- セル、フード、グローボックスを備え、約 90 種類の RI を取り扱うことが可能。
- JRR-3 で照射した試料を、輸送管を通じて RI 製造棟のホットセルに受け入れ可能。



7

JAEA 密封小線源治療用 RI の製造

JRR-3 では、密封小線源治療（内部放射線治療）に使用する Au-198 と Ir-192 を照射製造している

● 密封小線源治療とは

小さなキャプセルやピンなどに密封された RI を腫瘍近くへ挿入し、患部を照射する治療方法。
患部を切除しないため、根治後の生活の質 QOL (Quality Of Life) が向上

2021 年 7 月
JRR-3 供用運転・RI 製造を再開

2021 年度実績（4 サイクル運転）
● Au-198 グレーン
302 個製造（国内需要の 30%）
● Ir-192 線源
41 個製造（ $\approx 100\%$ ）

Au-198 グレーンを用いた咽頭がん治療



Ir-192 線源を用いた口腔がん治療



2022 年度実績（7 サイクル運転）
● Au-198 グレーン
695 個製造（国内需要の 70%）
● Ir-192 線源
72 個製造（ $\approx 100\%$ ）

医療用 RI を継続的に供給し
がん治療に貢献

8

JAEA 医療用 RI の状況

- ✓ 特殊法人の整理合理化（1995 年）→ 海外から輸入可能な中長寿命 RI は製造中止
- ✓ 核医学治療用 RI に対する国内需要の高まり
- ✓ モリブデン-99 / テクネチウム-99m は SPECT 検査で最も多く用いられている
- ✓ 全量を海外から輸入
- ✓ 供給不安定
- ✓ 経済安全保障の観点から医療用 RI の国産化
- ✓ JRR-3 の運転再開（2021 年）
- ✓ 海外でも国を挙げて



医療用等ラジオアイソトープ製造・利用促進アクションプラン（2022 年 原子力委員会）

官民一体となって

9

JAEA アクションプラン (Mo-99/Tc-99m) への JAEA の取組

医療用 RI の国産化等を実現させるために「医療用等ラジオアイソトープ製造・利用促進アクションプラン」(令和 4 年 5 月原子力委員会決定)が策定
 □ 官民連携により実施する国内体制を構築し、製薬企業との協力体制を構築する。(2023 年度)
 □ 製造技術を確認し、JRR-3 で製造した Mo-99 の試験供給を開始する。(2025 年度)
 □ 国内需要の約 3 割の国内製造を目指す。(2027 年度)

【JAEA としての活動：第 4 期(令和 4 年度～令和 11 年度)中長期計画】

産学官の共創によるイノベーション創出への取組の強化

核医学検査(テクネチウム製剤)の原料となるモリブデン 99 の安定した国内供給体制の強化を目指し、JRR-3 の性能を有効に活用した社会実装のための照射製造技術開発を推進する。



【中性子放射化法 (n, γ) による Mo-99 の製造】
中性子捕獲によって生成された Mo-99 には、ウラン 235 核分裂法と比較して放射性廃棄物の発生を大幅に削減しながら、後続の処理ステップを大幅に簡素化するという大きな利点がある。一方、比較射能が低い生産性向上のための技術開発が求められる。

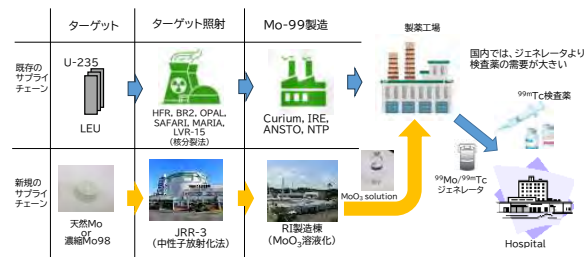
	核分裂法	放射化法
ウランの使用	有	無
プルトニウムの生成	有	無
核分裂産物	低い	高い
比較射能	高い	低い

Mo-99/Tc-99m 国産化に向けた年度展開

	2022	2023	2024	2025	2026	2027	2028~
JRR-3 の運転	再開	再開	再開	再開	再開	再開	再開
Mo-99/Tc-99m の一部国産化			国内体制構築	国内体制構築	国内体制構築	国内体制構築	国内体制構築
			照射試験	照射試験	照射試験	照射試験	照射試験
			分離・抽出・精製技術開発	分離・抽出・精製技術開発	分離・抽出・精製技術開発	分離・抽出・精製技術開発	分離・抽出・精製技術開発

10

JAEA モリブデン 99 サプライチェーンの将来像



- ✓ 天然モリブデンまたはモリブデン 98 濃縮ターゲット JRR-3 で照射。
- ✓ 照射製造されたモリブデン 99 を RI 製造棟で水酸化ナトリウム溶液に溶解し製薬工場に出荷。
- ✓ 製薬工場でテクネチウム 99m を分離・抽出し、検査薬として製品化し医療機関に頒布。

既存サプライチェーンと新規サプライチェーンの調和

11

JAEA 国内 RI 製造の推進が目指すべき方向

① 試験研究炉の必要性

- ✓ JRR-3 の高経年化対策、燃料の確保、使用済燃料の処分に対して、適切な予算の配分又は措置により、安心かつ安定した長期運転を確保する。
- ✓ もんじゅサイトに設置する新たな試験研究炉の計画を着実に進め、JRR-3 と連携した国内供給体制を実現する。

② 人材育成

- ✓ 試験研究炉による RI 製造にかかわる人材について、核化学・放射化学分野などの技術者・研究者が一線を超えて、人材が不足している。
- ✓ 他部署や他施設の技術者・研究者との技術交流及び技術的支援により、リソースを確保すべきである。

③ 核医学治療薬の原料となる RI の国内製造

- ✓ 国内で承認されている核医学治療薬の原料となる RI は、全て海外から輸入されているが、欧米各国における需要の増大に伴い、我が国への輸入が安定的に実施できる見込みは極めて低くなっている。
- ✓ JRR-3 における中性子放射化法による製造技術は、ルテチウム-177 やヨウ素-131 など、モリブデン-99 以外の医療用 RI の製造に応用できる。

12

JAEA JRR-3の施設供用制度

- 施設供用制度とは機構の保有する施設を、広く外部の方に利用してもらう制度
- 募集は年2回

JRR-3の場合は、
11月→翌年4月1日から次年3月31日までの1年間の利用
5月→下期募集（10月以降の追加募集）

照射利用においては照射時間

- 利用にあつては、所定の審査を経た上で、**マシンタイム（利用時間）**を割り当てられる。
利用料金は利用後の成果の取り扱い（占有、非占有）によって料金が異なります。

（JRR-3照射利用設備の利用料金表）

利用種	課題	利用料金	
		電子線照射 （1サイクル・1標準容器当たり）	水素照射 （1時間・1標準容器当たり）
成果非占有 （研究成果を占有せず、論文発表等の成果公開）	一般課題	8,500円	80円
	優先利用課題 （競争的資金を利用することを条件に課題審査を省略し、優先的に行う課題）	93,550円	890円
成果占有 （研究成果を占有し、成果公開を行わない）	一般課題 （商業利用目的等での利用を行う課題）	281,960円	2,710円
	利用促進課題 （産業利用、学術利用に限らず、研究開発目的等での利用を行う課題）	216,130円	2,080円

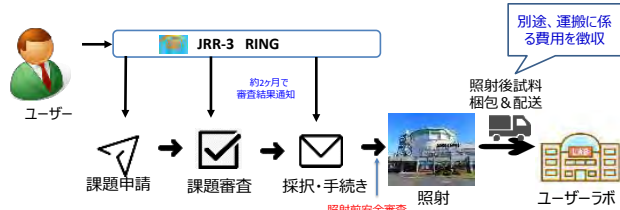
1 回利用当たり13,300円の手数料を別途いただきます。

13

JAEA JRR-3の照射利用の一般的な流れ

- JRR-3の課題申請は、課題採択システムRING（Research Information Navigator）にて行います。https://jrr3ring.jaea.go.jp/

課題申請から実験報告までの手続きをRINGにて一貫して対応可能です。



14

JAEA 供用施設以外の施設（例えばRI製造棟）を利用する場合

- 機構は、利用者が施設供用に伴い、供用施設以外の施設の利用を必要とするときは、**業務に支障のない限りこれを利用**させることができる。
- ただし、利用者との間で、施設の名称、使用目的、方法、期間及び場所、利用料金、その他の必要な事項を記載した**契約書により契約を締結**する。

RI製造棟を利用する場合の各種契約（例）

照射等に関する基本契約

建物等賃貸借契約

照射前業務契約

放射性廃棄物の前処理等に関する契約



使用する部屋ごと、設備ごとに時間単位（占有率）で貸し出すことが可能

15

JAEA 共同研究による施設利用

機構と共同研究者が相互にその成果を利用する目的の場合、共同研究が成立



- 共同研究の費用は、共同研究の分担に応じ、機構及び共同研究者がそれぞれ負担する。必要性を認めた場合に限り、共同研究者への研究資金等の提供可能。
- 共同研究を行うために機構の施設等を共同研究者が利用する場合は、共同研究者が費用を負担する。必要性を認めた場合は、この限りでない。

16



（ご清聴ありがとうございました。）

17

質疑応答

Q：施設利用は比較的最近できた制度か？

A：従来からあるシステムで、共同研究が研究者と研究者が行うものだった。施設と直接やりとりができるシステムになった。

Q：JRR-3の利用料は比較的安い。RI施設を利用する場合には施設賃貸などを契約して行う形式になるのか？

A：その通り。賃貸などの契約を締結して利用料金を別途支払えばRI施設を利用できる。

2.3.2 角山 雄一（京大環境安全保健機構）

「核医学に関する前臨床研究体制の構築を目指して」

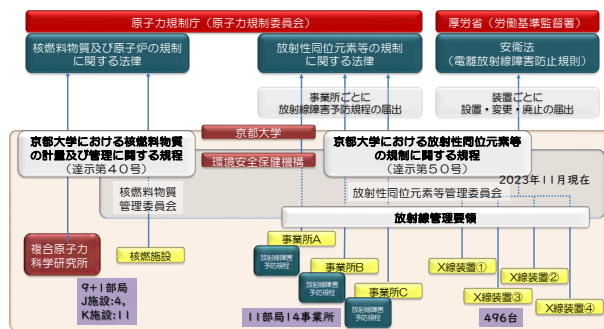
核医学に関する前臨床研究体制の構築を目指して

京都大学環境安全保健機構
放射線管理部門 室教授
大阪大学核物理研究センター
宮へい准教授
角山雄一（つのやまゆういち）

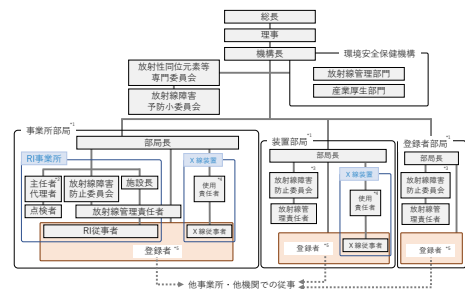
01

環境安全保健機構
放射線管理部門
(RRIセンター)
概要

the Radiation Management Division,
Agency for Health, Safety and Environment, Kyoto University



京都大学放射性同位元素等安全管理組織図



- *1 事業所部局：事業所を持つ部局。環境安全保健機構が委員会以外でエクス線等装置を管理する部局。登録者部局：事業所部局又は装置部局以外の部局。
- *2 放射線取扱士任者
- *3 事業所を持たない部局のうち、環境安全保健機構が委員会以外の設置が必要であると認められた部局に設置。
- *4 エクス線等装置ごとに使用責任者を置く。
- *5 放射性同位元素等の取扱い、管理又はこれに付随する業務に従事するための登録を環境安全保健機構長から受けたもの。

環境安全保健機構放射線管理部門 沿革

1952年 昭和27年	学内共同利用施設「放射性同位元素総合研究室」設置 (医学部附属病院構内・化学研究所の管理のもとに運営開始)
1960年 昭和35年	北部構内に新築移転
1971年 昭和46年	京都大学放射性同位元素総合センター 設置 (北部構内)
1973年 昭和48年	放射性同位元素総合センター 新研究棟 竣工 (医学部構内)
1997年 平成9年	教育訓練棟 竣工 (医学部構内)
2005年 平成17年	環境安全保健機構 設置
2015年 平成27年	環境安全保健機構放射線管理部門 (本部・分館)
2022年 令和4年	環境安全保健機構放射線管理部門 (RI規制法上の事業所名称は変更なし)



昭和36年当時の
化学研究所放射性同位元素総合研究室
(北部構内・現在の分館)

事業所名称：放射性同位元素総合センター (医学部構内)



承認番号：第5369号
事業所名称：放射性同元素総合センター分館（北部構内）



分館



低バックグラウンドGe半導体検出器による
高分解能γ線測定装置
High resolution γ-ray Spectroscopy using
Germanium Detector

高分解能γ線検出器を有するGe半導体検出器によるγ線測定（γ線分析）は、放射性核種の同定や環境中の核種の追跡などに用いられる。

モスbauer効果測定装置
Mossbauer Spectroscopy using Co-57/Fe-57
and Sn-119/Ti-48/51 elements

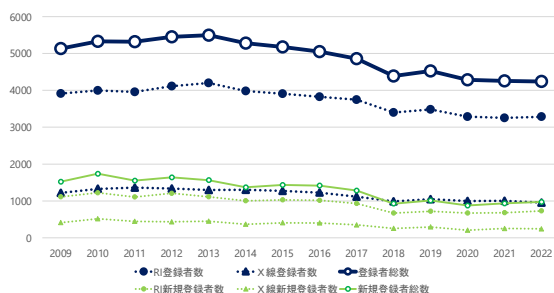
Co-57, Sn-119の同位体を用いた（X線）モスbauer効果測定（X線分析）は、物質の分子構造や電子状態の研究に利用される。

02

当部門
の
現状と課題

the Radiation Management Division,
Agency for Health, Safety and Environment, Kyoto University

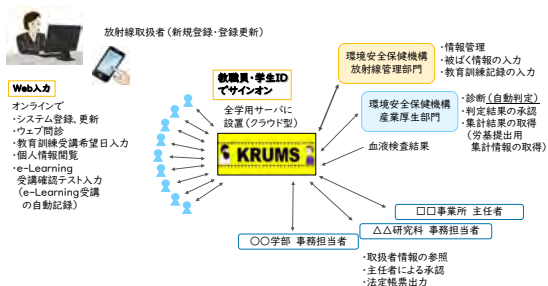
京都大学におけるRI・X線登録者数 年推移



京都大学環境安全保健機構放射線管理部門のミッション



KRUMS (Kyoto University Radiation User's information Management System)



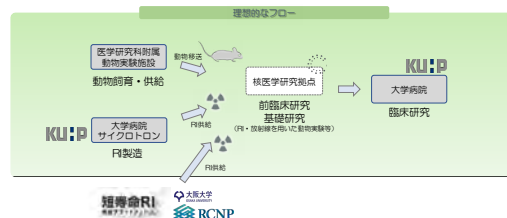
<https://radi.irc.kyoto-u.ac.jp/bear2024/>



核医学系
臨床前研究
の推進

The Radiation Management Division,
Agency for Health, Safety and Environment, Kyoto University

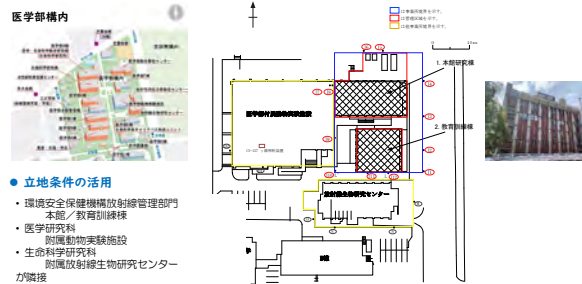
環境安全保健機構



環境安全保健機構

- セラノスティクス医療
- 核医学検査のための次世代新薬
- 先端放射線がん治療（短半減期アルファ核種放射線がん治療等）
等に関する基礎研究・開発研究の拠点を
- 放射性同位体（RI）や放射線を用いた動物実験
を要する先端研究が実施可能な施設設備の拡充・整備を

環境安全保健機構

[illegible]

2024年度より短半減期 α 核種
Ac-225, At-211の利用が可能に。

- ・ α 核種使用実験室
- ・ α 核種投与動物用の飼育室
- ・ α 核種専用の流し
- ・他の核種と区別した廃棄物処理方法
- ・ α 特有の防護方法、汚染防止措置

等をマニュアル化



環境安全保健機構

- 次世代型核医学医療技術に関連する研究についての情報交換
- 今後期待される研究課題の抽出
- 臨床前研究を実施する施設として必要となる設備や大型機器類の精査等を行う

部署	施設・分野等	職名	氏名
医学部	医学専攻	教授	中本 裕士
	がん免疫POT研究講座（産学共同）	特任教授	深本 謙司
	がん免疫POT研究講座	特任教授	山口 智希
	がん免疫POT研究講座	特任准教授	中本 博太郎
医学研究科	川渡がん免疫総合研究センター	特任准教授	上村 孝作
		助教	徳高 正樹
医学部附属病院	川渡がん免疫実験施設	教授	野田 雅希
		木村教授	木村 智恵
総合原子力医学研究所	放射線科	講師	森本 隆一
		教授	山村 朝雄
薬学研究科	薬科学専攻	教授	野田 正博
		講師	藤本 拓也
生命科学研究所	附置放射線生物研究センター	助教	野田 浩
		機構長・部門長	米田 悠
環境安全保健機構	放射線管理部門	専攻教授	内山 雄一
		助教	藤本 拓也
		助教	藤本 基佳

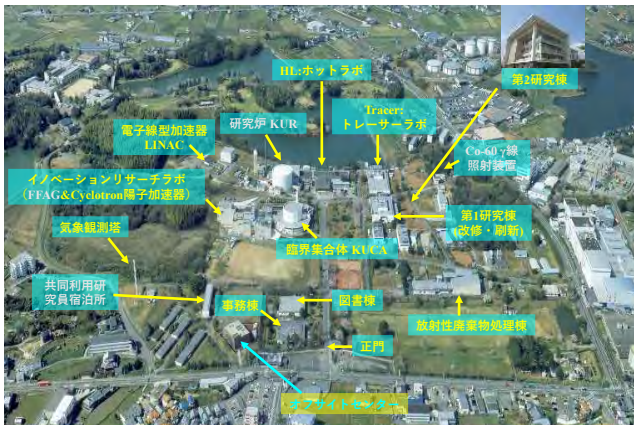
質疑応答

Q：来年度から Ac と At を使えるように整備したとのことだが、実際に使用するユーザーはいるか？

A：薬学部の方が阪大からの供給を受けて進めていく。そのための準備を今行なっている。

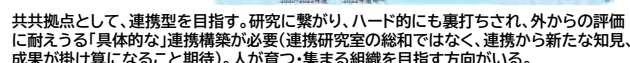
2.3.3 山村 朝雄（京大複合研）

「複合研 MKB による将来計画の検討状況」（共有と議論）

 京都大学複合原子力科学研究所 将来計画短期研究会 2024/2/2 京都大学複合原子力科学研究所 将来計画委員会 Make KURNS better = MKB委員会 ハード班 活動開始・中間報告 日野 正裕 堀 順一 八島 浩	活動歴 Phase 1活動 - 第1回MKB委員会 2023/07/26 ➢ 研究所の歴史と研究所の現状認識・分析（人員・予算・共同利用・論文数・科研費・外部資金） ハード班：所内大型施設からの視点による現状分析・将来可能性の探索 ソフト班：所内研究活動からの視点による現状分析・将来可能性の探索 - 第2回MKB委員会 2023/09/21 ➢ 各班の検討結果発表及び討論 各班にて再検討会 - 第3回MKB委員会 2023/11/07 クロストーク検討1 ➢ ソフト班からの意見・ハード班の検討結果を踏まえて - 第4回MKB委員会 2023/11/22 クロストーク検討2 ➢ ハード班からの意見・ソフト班の検討結果を踏まえて - 第5回MKB委員会 2023/12/13 ・ ・ ・ ハード班：所内大型施設からの視点による現状分析・将来可能性の探索 第1回ハード班検討 2023/8/4 第2回ハード班検討 2023/8/23 「我々は何であるか？」 「我々は何を目指すべきなのか？」について、ハード班で検討 第3回ハード班検討 2023/10/2 第4回ハード班検討 2023/10/27 我々の論理は外部の審議に十分耐えるか？に留意しつつ、ハード面からの検討 第5回ハード班検討 2023/11/13-21 第6回ハード班検討 2023/12/6-11 (メールベース) 解決すべき問題点、全所一丸となるための、ハードとソフトの融合のあり方等 ・ ・ ・
複合原子力科学研究所が、2026年のKUR停止後、京都大学の研究所として、何を指してどのように活動していくべきか？そのためにはどのようなことが必要か。我々は何者であるか？を意識して、 まず京都大学一員として、基本理念及び国際卓越大学院大学を目指すこと等の現状を確認し、施設関連の概要を把握し、論点を整理しつつ、意見交換を行った。 京都大学は、創立以来築いてきた自由の学風を継承し、発展させつつ、多様な課題の解決に挑戦し、地球社会の調和ある共存に貢献するため、自由と調和を基礎に、ここに基本理念を定める。 https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/about/operation/ideals/basic 研究：京都大学は、研究の自由と自主を基礎に、高い倫理性を備えた研究活動により、世界的に卓越した知の創造を行う。京都大学は、総合大学として、基礎研究と応用研究、文科系と理科系の研究の多様な発展と統合をはかる。 教育、社会との連携、運営の項目もある。複合研の1教員としては、研究の自由と自主を基礎に、独自研究を発展させ、学生をはじめとする後進の育成に貢献することだが、ここで最も考えるべきは、組織としてのあり方、将来計画とする。 原子炉実験所からの歴史があり、どのようにスクラップ＆ビルドをするか。現有施設の責任も当然ある。今後も、共同利用・共同研究拠点(共共拠点)として活動を行うことが自由な研究をする場を維持する上でも重要として議論を行った。	 複合原子力科学研究所敷地 敷地面積：約10万坪
ハード班の所内大型施設の現状把握と議論のポイント 共同利用共同研究拠点(共共拠点)であることが自由な研究をする場を維持する上で重要、そこで現状施設を確認 KUR(2026年5月をもって廃止措置に移行する。)× HL(改修の計画も進んでおり利用ニーズは高い。)○ KUCA(低濃縮化後有効に利用する義務が課されている)○ LINAC(高経年化の懸念はあるが今後も利用価値が高い)○ Co-60(利用停止。廃止措置に移行する。)× 30MeV Cyclotron(遮蔽強化等のデコ入れが必要)○ 150MeV FFAG(将来計画では対象から外れている。)× Tracer(今後も利用価値が高い)○ ○において、「共共拠点」の中に位置づける直接研究に結び付くことは何か？実現可能性(費用対効果等も考慮した)競争力や複合研の目指す方向との整合性、議論できるアイテムを整理し、具体案(整備計画等)へどうまとめられるかの対応から必要。 ×で、業務が無くなる訳ではないことに注意。KUR等「廃止措置」は組織として粛々と進めることであり、KUR廃止措置があるから、研究するという立ち位置にはならない(廃炉研究によってKURの廃止措置を合理的に進められる可能性はある)。ただめったにない特徴的なこととして、関係する研究フィールドの人が集まる場(ハブ)としての可能性は探るべきである。	1.我々は何であるか - 研究炉および種々の装置を用いて積み重ねてきた「多様な放射線・放射性物質を用いた装置・測定技術及びこれらを用いた最先端学術研究を行う専門家集団」である。 - 装置・測定技術開発及び学術研究は、「所内外の共同研究および独自研究」によって推進されてきた。 「多様な放射線・放射性物質を用いた装置・測定技術及びこれらを用いた最先端学術研究を行う専門家集団」あえて原子力の言葉を使わなかった意図(研究そのもので立つべき)は理解 しかし、現状は(研究で立つためにも)、「原子力」の言葉は必要。広義の原子力分野は広く、具体的に行う、目指す「原子力」研究の可視化が必要(特に、狭義では、廃炉、革新炉等の研究)。

- ・経験豊かな多様な放射線・放射性物質を用いた専門家同士の協業・共創によるこれまでの学術の発展・新たな学術創出を目指す
＝複合原子力科学の再定義及び推進
- ・施設としては共同利用・研究拠点を維持を目指す。(大型ではなく)
- ・上記の目的のため所内施設の再活性化・外部施設との連携構築
- ・放射線および原子力関連教育

例えば、「もんじゅ」サイト新試験研究炉計画は、長期で大規模な機関連携の好事例となるのではないかと。



多様な量子ビームの利用研究、多様な放射性同位元素利用研究、新型原子炉研究、廃止措置研究
前者2つは研究を進める手段としての方向性。一方、原子力研究は研究の目的であって手段ではない。
原子力研究も、多様な量子ビームや多様な放射性同位元素利用なしに実施は難しい。
重要なキーワードであり、より具体的にあり方を整理することが必要。

- ・ 現有施設(サイクロ・ホットラボなどなど)の取捨選択:以下論点
「所内外の連携＝複合原子力科学を活かすことができるか？」
- ・ KURの廃止措置の位置づけ(研究/作業)
- ・ 複合(多様な放射線利用)ではなく狭義の原子力科学をどこまで取り込むか?取り込まないか?

- ・ (狭義の)原子力研究の方向性:
次世代革新炉開発に向けた研究:
新型炉燃料開発のための基礎研究
- ・ 廃止措置を含むバックエンド研究(一例)
燃料デブリ分析
廃棄物量・潜在的有害度の低減に向けた研究
- ・ KUCA, LINAC, HLの特徴を最大限に生かし、他機関との連携を図ること
で原子力研究及び人材育成の観点形成を検討等

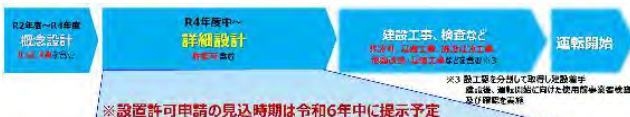
- ・概念設計:2020年度～2022年度
 - ・ JAEA:全体統括、炉心設計、地盤調査
 - ・ 京大:利用二重子、利用設備の設計、利用(運用)の在り方
 「**新型研究炉開発:利用二重子(KNRR)を設置**」
 - ・ 福井大:産業利用、地元との連携(企業、県、市など)

JAEA、京大、福井大に加え、学術界、産業界、地元関係機関等がなるコンソーシアムを構築し、幅広い意見を反映しながら概念設計及び連携の在り方検討を実施
 コンソーシアム会合等、新試験研究炉推進室HPに掲載
<https://www.iaea.org/04/nrr/ipl/>

目的とした中出力が
「もんじゅ」サイトに設置

- ・西日本における原子力の研究
開発・人材育成の中核的拠点
- ・地元振興への貢献

- ・ 詳細設計:2023年度～(2023年3月に詳細設計を開始)
 - ・ 設置許可申請に必要な仕様等を決定→設置許可申請(JAEA)
 - ・ JAEAが詳細設計の実施主体となり、福井大・京大の協力のもと計画を推進→ JAEAと研究契約を締結し、研究経費により所内に産学共同研究部門を設置



原子炉の出力と利用目的：熱出力10MW級の中性子ビーム炉（R2/9文部科学省提出）

5つの性能目標を設定

- ①安全性 ②安定性
- ③経済性 ④利便性
- ⑤将来性

基本仕様を策定

- 燃料要素と配管
- 冷却材
- 減速材

原子炉の性能を検討

- 原子炉の基本的構成とともに、運転時や原子炉停止中の中性子の分布等の他の検討要素
- 定出力（10MW未満）では、熱中性子炉は世界最高レベルの性能

原子炉の成立性を検討

- 設計の進捗の進捗から判断し、炉の成立性を確認
- 今後、システムの完成から成立性を検討

制御手法を検討

- 炉の制御手法として、2重棒制御（フィードバック/フィードフォワード）
- 今後、工学的安全性を確保

原子炉概念の基本構元

対 象	プラント全体の検討	機器・設備等の検討	建築設計 機器製作発注	建築設計開始 機器・設備との調整	完成
プラント全体	設置許可申請 設計意図申請 使用館事業者検査・確認 新増設計書書 建設の判断 原子炉設置業務管理(基本)契約 原子炉設置業務基本契約	概念設計 詳細設計Ⅰ 研究用機器設計(JAEA・京大) 基本設計 配置計画	特殊機器製作(脆化契約) 汎用機器製作(競争入札) 研究用機器試作試験(JAEA・京大) 実施設計 土木工事・アクセス工事	機器搬付調整 据付完了 建築建設	原子炉運転開始
機器・設備					
土木・建築					

※建設計画については、国における検証を経て判断

新試験研究炉 利用装置選定について

新試験研究炉は多岐にわたる革新的研究成果やイノベーション創出が期待でき、「国際公共財」として世界に誇れる施設を目指す。研究者を中心に広く人が集まる魅力的な施設となることが重要で、10MWの性能を最大限に活かすビーム利用設備としては冷中性子源(CNS)を充実させること、そして優先5装置(小角散乱、イメージング、回折、反射率、放射化分析)をまず選んだ

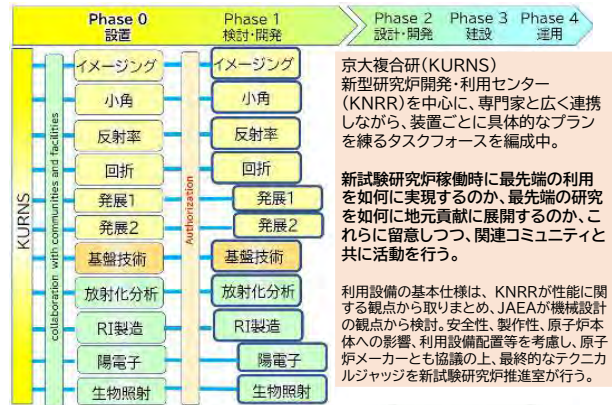


学術・産業利用において試料環境等で特徴を出すことを念頭に、優先装置を複数台持つ形を基本とし、10MW研究炉の性能を活かすために、ビーム利用:4+11=15、照射利用5の合計20台の装置を想定

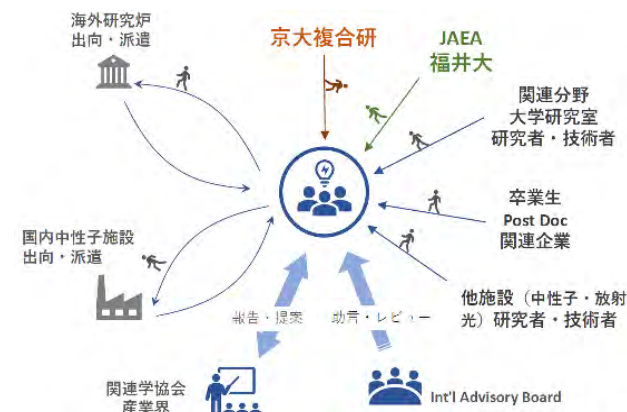
想定照射利用:
放射化分析
RI製造
材料照射
陽電子ビーム
生物照射

今後詳細と優先順位を決める

実験装置設計に向けて(タスフォース編成)



タスフォース構成:関連コミュニティと共に発展



まとめ

- 我々は多様な放射線・放射性物質を用いた装置・測定技術及びこれらを用いた最先端学術研究を行う専門家集団として、複合原子力科学を推進する
- KURという大型のハード(施設)はなくなるが、共利拠点維持を目指し、所内施設の再活性化・外部施設との連携構築を強化する(Win-Win)
- KUR等「廃止措置」は組織として粛々と進める必要がある
- 複合研がコアとなり、研究コミュニティの発展に寄与することが重要であり、各ハード(施設)の具体的な整備計画(廃止措置含)、競争力及び実現可能性の確認と実施が必要。大きな新しいハードを伴う長期の連携計画(チャンス)として「もんじゅ」サイト新試験研究炉計画がある
- 新試験研究炉稼働時に最先端の利用を如何に実現するのか、最先端の研究を如何に地元貢献に展開するのか、これらの課題達成が非常に重要。長期的視点の研究・装置開発を通じて、関連コミュニティと共に発展し、より高いレベルでこれらの課題解決を目指すことは、放射線及び原子力関連教育・持続可能性のある複合原子力科学の推進に寄与すると信じる。全所一丸となり(専門家集団の一員、自分事として)、新たな複合研を構築する将来構想・その実施を開始する時期にいる

新たな複合研構築しましょう！

We will make KURNS better

真のMKBは
We have Made KURNS Best!

ご清聴ありがとうございました

質疑応答

C：原子力の扱いが色々難しいところがあると思うが、色々な制約を受けない研究を複合研として考えなければいけない。また、日本の原子力研究でも考えなければいけない。その意味で問題意識を広く持ってほしい。

C：2点コメントしたい。一つは原子力研究とは言っても興味という部分が原子力にとられる必要はなく適切に設定する。逆にいうと今までの複合研の在り方もいい線いっている部分もある。2つ目はコミュニティと共有や交流をしていくこと。将来を見ると一番大事なのは教育なので、学生や若い人を惹きつける意識が必要である。

C：京大は学生を輩出する組織、場所であることをアピールできると良い。もう一つは熊取にあるという利点、熊取で研究する意義を考えなければいけない。施設が熊取にあるから研究をしに来る。そこにいくことで研究装置などがある。そこにあるからこそ学生がくる。特徴を活かした尖った研究をする。学生を輩出するメリットを出すのがいいだろう。

C：JAEAは研究者が研究する拠点ではあるが、JAEAは大学が学生を輩出していないと干渉する。人材を輩出するという点を活かしてほしい。JAEAで出島を作る。それぞれのサイトを活かしながら協調しないと生きていけない時代に来ている。

C：KURがなくなってしまうと原子炉を考える人がいなくなってしまう。そのような場を提供できる環境を維持してほしい。

C：人材育成という観点ではKURの廃止措置は業務ではなく人材育成に使うのはどうだろうか？

2.4 第1日目午後・セッションD

2.4.1 木村 寛之（金沢大）

「 ^{177}Lu を利用した核医学治療薬の開発」

2023年度「アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射
医療用RI製造に関する専門研究会」
13:00~13:20
セッションD

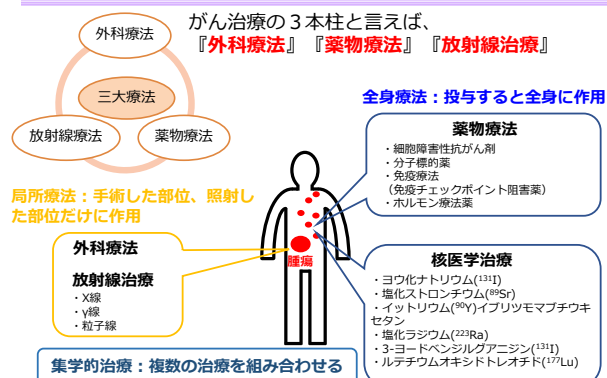
Lu-177を用いた核医学治療薬の開発

金沢大学
疾患モデル総合研究センター

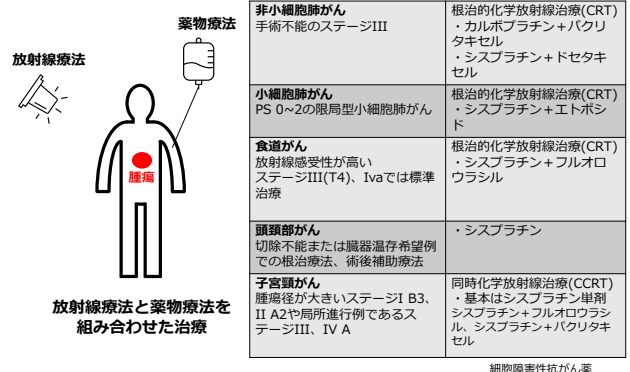
木村 寛之

放射線と薬の力で医療はどう変わるのか

がん治療の全体像

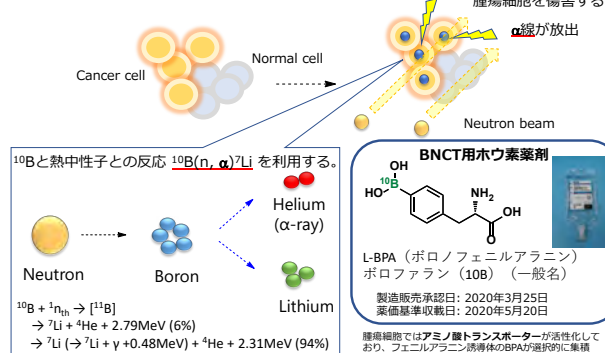


化学放射線療法



ホウ素中性子捕捉 (BNCT)

「切除不能な局所進行又は局所再発の頭頸部癌」



Clinical studies with combination of MRT and chemotherapy agents.

Cancer	Type of study/clinical trial phase	No of patients	Molecular radionuclide therapy (MRT) agent	Chemotherapy drug	Year of study
mCRPC	UpFront PSMA, open-label, randomized, stratified, 2-arm, multi-center, Phase II trial	140	^{177}Lu Lu-PSMA-617	Docetaxel	2020
mCRPC	TheraP trial open-label, randomized, stratified, 2-arm, multi-center, Phase II trial	200	^{177}Lu Lu-PSMA-617	Docetaxel	2020

List of clinical trials of MRT in combination with molecular targeted therapeutics.

Cancer	Molecular radionuclide therapy (MRT) agent	Molecular targeted inhibitor	Clinical trial phase	Year of study
Metastatic Merkel cell carcinoma	^{177}Lu Lu-DOTA-TATE	Anti-PD-L1 mAb	Phase I and II	2020
Somatostatin receptor positive tumors	^{177}Lu Lu-DOTA-TATE	PARPi olaparib	Phase I	2020
mCRPC	^{177}Lu Lu-PSMA	PARPi olaparib	Phase I	2019

Nuclear Medicine and Biology 98 (2021) 40-58

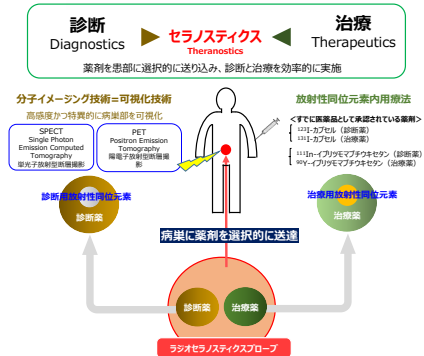


Clinical studies with combination of MRT with EBRT.

Target disease/cancer	Type of study intention/phase	No of patients	MRT	EBRT	Mode	Year of study
Unresectable advanced primary or recurrent meningioma	Long-term toxicity and efficacy	10	7.4 ± 0.3 GBq of [¹⁷⁷ Lu]Lu-DOTA-TATE/TOC	Total dose of 40-60 Gy	Sequential PRRT + EBRT	2020

Nuclear Medicine and Biology 98 (2021) 40-58

ラジオセラノスティクス



放射性診断薬・治療薬の組み合わせ

診断薬	治療薬
ヨウ化ナトリウム (¹²³ I) カプセル	ヨウ化ナトリウム (¹³¹ I) カプセル
インジウムペンテトレオチド (¹¹¹ In)	ルテチウムオキシドレオチド (¹⁷⁷ Lu)
インジウム (¹¹¹ In) イブリツモマブチウキセタン	イットリウム (⁹⁰ Y) イブリツモマブチウキセタン
3-ヨードベンジルグアニジン (¹²³ I) ¹²³ I-MIBG	3-ヨードベンジルグアニジン (¹³¹ I) ¹³¹ I-MIBG

塩化ラジウム-223 (²²³Ra) (α線放出核種)

- ・2013年に米国FDA、欧州EMAで承認。
- ・日本では2016年3月に承認。
- ・骨転移を有する去勢抵抗性前立腺がんの治療に使用。

臨床利用が期待されるα線放出核種

核種	半減期	エネルギー (MeV)	飛程 (μm)	備考
²¹¹ At (ハロゲン)	7.21 h	5.87	74.1	日本で検討が進んでいる
²²⁵ Ac (アクチノイド)	10.0 d	5.64	69.8	日本で検討が進んでいる。核種の製造に課題あり
¹⁴⁹ Tb (ランタノイド)	4.12 h	3.97	41.3	開発途上
²¹² Pb/ ²¹² Bi (錒系)	60.6 m	6.05	77.6	開発途上
²¹³ Bi (錒系)	45.6 m	8.32	83.7	開発途上
²²⁷ Th (アクチノイド)	18.7 d	5.70	71.0	開発途上

* ジャパン・アスタチン・コミュニティ (JAC) が設立

ルテチウムオキシドレオチド (¹⁷⁷Lu)

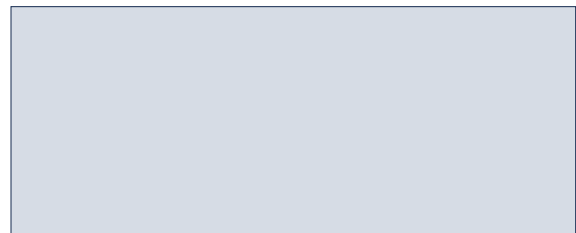
2021年06月23日

- ・放射性医薬品「ルタテラ®静注」（一般名：ルテチウムオキシドレオチド (¹⁷⁷Lu)）（以下、「ルタテラ」）について、「ソマトスタチン受容体陽性の神経内分泌腫瘍」を適応症として製造販売承認を国内で取得した。
- ・「ルタテラ」は、放射性リガンド療法の一つであるペプチド受容体放射性核種療法 (Peptide Receptor Radionuclide Therapy; PRRT) に用いられる医薬品で、「ペプチド受容体放射性核種療法剤」として国内で初めて承認された。
- ・神経内分泌腫瘍に高率で発現するソマトスタチン受容体に結合し、ルテチウム ¹⁷⁷から放出される放射線ががん細胞を直接攻撃する。

	半減期	β線の最大エネルギー	γ線エネルギー
	6.73日	500 keV	113, 208 keV

1回7.4GBqを8週間間隔で最大4回

[¹⁷⁷Lu]Lu-PSMA-617進行性PSMA-陽性転移性去勢抵抗性前立腺がんの治療を目的とした初の標的放射性リガンド療法として欧州委員会の承認取得
2022年12月13日



日本において、2020～2024年（年平均）には前立腺がん罹患数は105,800人となり、男性がんのうち、第一番目の罹患数になると予測されている。

Journal of Nuclear Medicine August 2016, 57 (8) 1170-1176

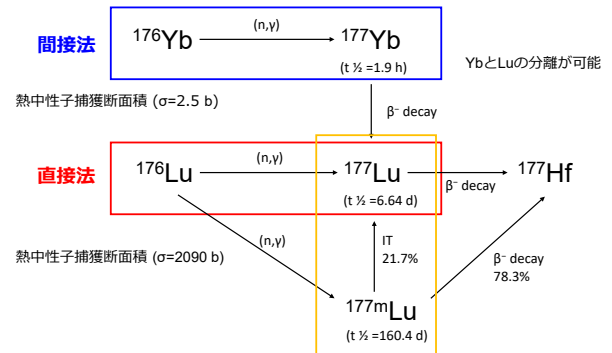
原子炉を活用したLu-177の製造研究

山村朝雄 京都大学・複合原子力科学研究所

鷺山幸信 福島県立医大
白崎謙次 東北大学・金属材料研究所
小川数馬 金沢大学・薬
木村寛之 京都薬科大学・薬

海外の原子炉の視察（2023年2月、山村）
SHINE Technologies, University of Missouri, Oak Ridge National Laboratory

原子炉を利用したLu-177の製造



YbとLuの同位体比率

Yb	Abundance %	Lu	Abundance %
168	0.13	175	97.41
170	3.05	176	2.59
171	14.3		
172	21.9		
173	16.12		
174	31.8		
176	12.7		

$^{176}\text{Yb}_2\text{O}_3$ (濃縮度 > 96%)
100mg 30万円程度

Lu-177の供給

供給企業	比放射能	製造法	その他
iTG	>3000 GBq/mg	間接法 $^{176}\text{Yb} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{177}\text{Yb} \xrightarrow{(t_{1/2}=1.9\text{ h})} ^{177}\text{Lu}$	GMP $\text{LuCl}_3/0.04\text{ M HCl}$ Lu-177mの混在なし
I.D.B. Holland BV	LuMark® Lu-177 >500 GBq/mg	直接法 $^{176}\text{Lu} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{177}\text{Lu}$	
ANSTO	>3000 GBq/mg	間接法 $^{176}\text{Yb} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{177}\text{Yb} \xrightarrow{(t_{1/2}=1.9\text{ h})} ^{177}\text{Lu}$	$\text{LuCl}_3/0.04\text{ M HCl}$
Eckert & Ziegler	>3000 GBq/mg	間接法 $^{176}\text{Yb} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{177}\text{Yb} \xrightarrow{(t_{1/2}=1.9\text{ h})} ^{177}\text{Lu}$	GMP $\text{LuCl}_3/0.04\text{ M HCl}$ [^{175}Yb]Ytterbium $\leq 0.1\%$ [$^{177\text{m}}\text{Lu}$]Lutetium $\leq 0.07\%$
JSC Isotope	1.11TBq/mg	間接法 $^{176}\text{Yb} \xrightarrow{(n,\gamma)} ^{177}\text{Yb} \xrightarrow{(t_{1/2}=1.9\text{ h})} ^{177}\text{Lu}$	$\text{LuCl}_3/0.1\text{ M HCl}$ ロシア・ウクライナ情勢の影響のため供給停止

日本アイソトープ協会から購入可能

化合物名	製造	投与量、みかけの比放射能	治療標的	参考文献
^{177}Lu -EDTMP	$^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$	投与量 18.5 MBq/kg 925 GBq/g	therapy of skeletal metastases phase III	Clin Transl Imaging (2015) 3:167–168 67–168 DOI 10.1007/s40336-015-009-x
^{177}Lu-PSMA-617	^{177}Lu -PSMA-617 using [^{177}Lu]Lu ₃ produced via $^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$ Lu route with moderate specific activity (0.66–0.81 GBq/μg)	1 dose of [^{177}Lu] Lu-PSMA (mean dose 7.5 GBq) 160 μg of PSMA-617 $^{177}\text{LuCl}_3$ 555 GBq/μg		J Labelled Comp Radiopharm . 2016 Jul;59(9):364-71. doi: 10.1002/jlcr.3414. Epub 2016 Jun 6. Cancer Biotherapy & Radiopharmaceuticals Vol. 36, No. 8 Original Research Articles
^{177}Lu -labelled NeoBOMB1			gastrin-releasing peptide (or amphibian bombesin) receptors, BB1 (NMBR), BB2 (GRPR) and BB3 (BRS3)	Phase II; completed NCT03724253 Phase III; completed NCT02931929 Dalm, S. U. et al. ^{177}Lu -NeoBOMB1, a novel radiolabeled GRPR antagonist for theranostic use in oncology. J. Nucl. Med. 58, 293–299 (2017).
^{177}Lu -labelled RM2	$^{176}\text{Yb}(n,\gamma)^{177}\text{Yb} \rightarrow ^{177}\text{Lu}$ 8 GBq of GMP grade, non-carrier-added [^{177}Lu]LuCl ₃ (iTG GmbH, Garching, Germany) > 3,800 GBq/mg > < 10 ⁻⁷ ($^{177\text{m}}\text{Lu}$)	4.5 ± 0.9 GBq 60 μg of a RM2-TFA	gastrin-releasing peptide (or amphibian bombesin) receptors, BB1 (NMBR), BB2 (GRPR) and BB3 (BRS3)	European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging (2020) 47:123–135 https://doi.org/10.1007/s00259-019-04504-3
^{177}Lu -Cetuximab			EGFR, Multiple Cancers (Colorectal, Head/Neck, Skin)	

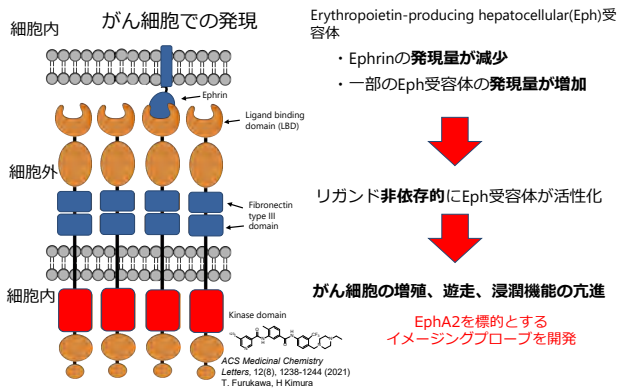
化合物名	製造	投与量、みかけの比放射能	治療標的	参考文献
^{177}Lu -Miluximab		[^{177}Lu]Lu-DOTA-Miluximab®, 199 MBq/mg(動物)	Glypican-1, Prostate Cancer, prostate cancer	DOI: 10.1021/acs.jmedchem.0c01957 J Med Chem . 2021 Mar 11;64(5):2705-2713.
^{177}Lu -DOTA-42d			Vascular EGFR, Breast Cancer	DOI: 10.1021/acs.jmedchem.0c01957 J Med Chem . 2021 Mar 11;64(5):2705-2713.
^{177}Lu -DOTA-Rituximab	^{177}Lu was purchased either from I.D.B. Holland BV or from Perkin Elmer. Lutetium-177 (LuMark® Lutetium-177 chloride) >500 GBq/mg PSMA-617も製造	Phase III Study in 31 Patients	CD20, primarily found on the surface of B cells	Journal of Nuclear Medicine July 2013, 54 (7) 1045-1052. DOI: https://doi.org/10.2967/jnumed.112.115170 Nucl Med Mol Imaging. 2015 Jun; 49(2): 85–107 doi: 10.1007/s13139-014-0315-z
	$^{177}\text{LuCl}_3$ was in the range of 22–26 Ci/mg	clinical study 10 mCi (370 MBq) of ^{177}Lu -c-DTPA-Rituximab conjugate (~ 3 mg) 1.48–1.85 GBq of $^{177}\text{LuCl}_3$		Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry volume 316, pages849–856 (2018)

$^{176}\text{Lu}(n,\gamma)^{177}\text{Lu}$
740–1110 GBq/mg

The theoretical specific activity of carrier-free (^{177}Lu) Lu is calculated from the following equation:

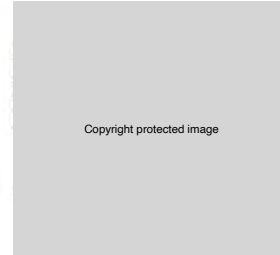
$$\frac{dN}{dt} = \lambda N = \frac{0.693}{t_{1/2}} \times N = \frac{0.693}{6.64 \times 24 \times 60 \times 60 \times 177} \times \frac{0.693 \times 6.023 \times 10^{23}}{177} \times \frac{1}{1.000} = 4.1067 \text{ TBq/mg} = 4106.7 \text{ GBq/mg}$$

がん細胞での転移、浸潤とEph受容体の関係

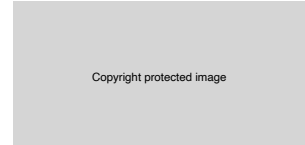


Eph receptor A2 (EphA2) とがんの関連性

種々の固形がんが発現している

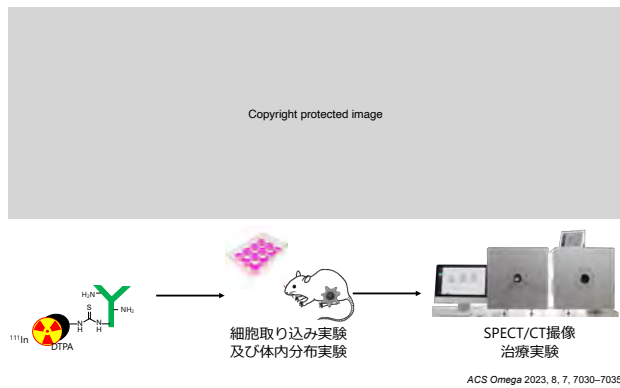


EphA2の発現量とがんの悪性度やがん患者の生存率との関連性が指摘されている

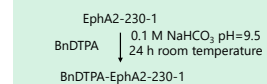


8) Giordano, G. et al. *Cells* 2021, 10, 2893
9) Zelinski, D. P. et al. *Cancer Res.* 2001, 61, 2301-2306
10) Nilan, I. et al. *Diagnostics* 2022, 12, 366

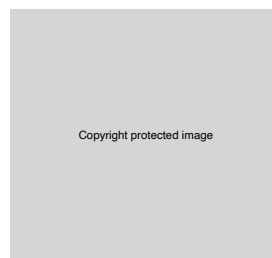
抗EphA2抗体を用いた研究の概要



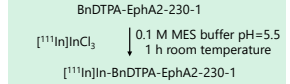
抗EphA2抗体へのBnDTPAおよびIn-111の導入



●PD-10カラムで精製



ACS Omega 2023, 8, 7, 7030-7035



●Amicon Ultra100Kで遠心し、精製



[¹¹¹In]In-BnDTPA-EphA2-230-1
放射化学的収率: 85.1% (n=2)
放射化学的純度: 98.5%

BnDTPA-EphA2-230-1の結合性の評価

U87MG (1×10⁵ cell)
+
Sample (1.6-100 µg/mL)
• EphA2-230-1
• BnDTPA-EphA2-230-1
• natIn-BnDTPA-EphA2-230-1

2% Fetal Bovine Serum (FBS)
Phosphate-Buffered Saline
60 min, 4 °C

Phycocerythrin-conjugated
goat anti-mouse IgG
secondary antibody

2% FBS
Phosphate-Buffered Saline
30 min, 4 °C

FACS Caliber



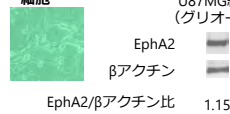
BnDTPA-EphA2-230-1、natIn-BnDTPA-EphA2-230-1ともにEphA2への結合性が維持されている

ACS Omega 2023, 8, 7, 7030-7035

細胞取り込み実験

がん細胞におけるEphA2発現の確認

細胞 U87MG細胞 (グリオーマ)



腫瘍塊 U87MG細胞

EphA2

βアクトチン

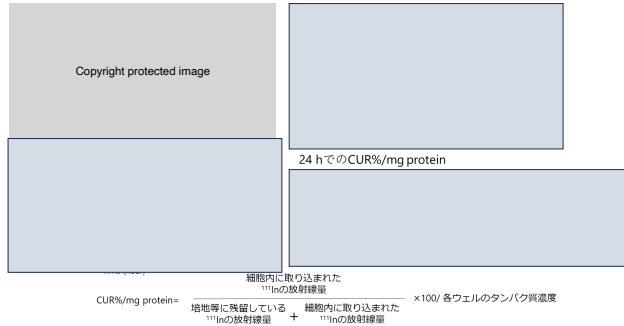
EphA2/βアクトチン比 0.89

$$\text{CUR\%/mg protein} = \frac{\text{細胞溶解液に含まれる放射線量}}{\text{細胞溶解液に含まれる放射線量} + \text{培地等に残留している放射線量}} \times 100 / \text{各ウェルのタンパク質濃度}$$



細胞取り込み実験

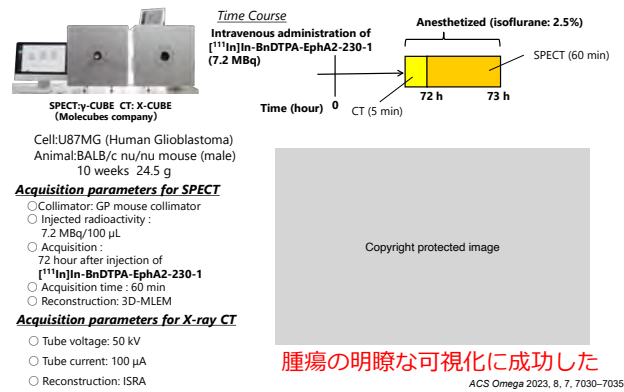
細胞取り込み実験(24 hまで)



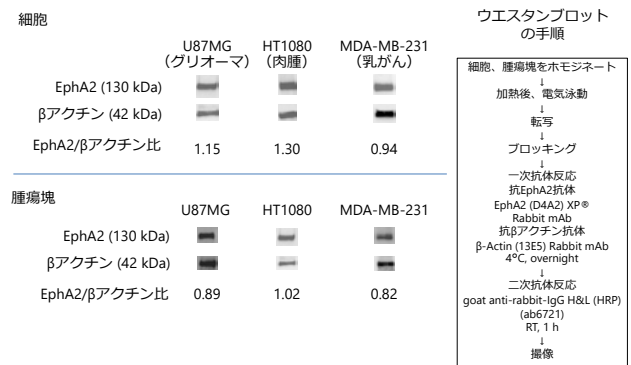
^{111}In In-BnDTPA-EphA2-230-1の体内分布実験



SPECT/CT撮像(^{111}In In-BnDTPA-EphA2-230-1)



がん細胞におけるEphA2発現の確認



まとめ

- 放射線と薬の力で医療はどう変わるのか
化学放射線療法、ホウ素中性子捕捉 (BNCT)、核医学治療
- 原子炉を活用したLu-177の製造研究
間接法、直接法
- ラジオセラノスティクスとLu-177製剤への期待
 ^{177}Lu]Lu-PSMA-617、 ^{177}Lu]Lu-DOTA-TATEなど、今後承認が期待される薬剤が開発されている
- EphA2抗体を用いたラジオセラノスティクス
 ^{177}Lu 標識EphA2抗体の治療実験より有効性が示されている。今後は、安全性、毒性試験を実施し、さらなる有効性の確認を行う。

質疑応答

Q：DOTA、NOTA、PSMAの毒性試験の話があった。NOTAに期待されている部分はあるか？

A：希土類イオンとの錯形成のメリットがあるから使用されている。

Q：安全性についてどの程度まで考慮する必要があるか？

A：NOTAとDOTAをもつ薬剤のいずれもが母体に抗体を使用しているから、標識時に加熱する反応を避けなければいけない。DOTAは錯形成に加熱が必要である欠点があるが、NOTAは室温40度位で90%程度が標識化できる。しかし、生体内での安定性は逆にDOTAの方が高く、NOTAは時間が経つと外れてくる。これらの点をいここ取りした配位子の開発が重要になる。

Q：医薬品開発側から見て核反応や核種分離の研究側に対してどのようなニーズがあるか知りたい。

A：比放射能を意識してほしい。他の金属が混入すると標識がうまくいかない。それだけ比放射能や放射化学純度の高いRIを作ってもらえると助かる。

Q：Lu-177などの供給の現状はどうか？

A：原子炉で作ったRIを利用できれば良いが実際には購入して研究している。比放射能などはチェックしている。同じLu-177製品でも、Eckert&ZinglerとJSC isotopeを比較すると、JSC isotopeの方が標識化反応が綺麗にいく。ただ、納品時期によっても標識率が高くない時がある。安定していない印象がある。

Q：国内での供給源があると助かるか？

A：供給源を常に見ている状況だ。外国からの輸入は注文した後でもキャンセルや、数ヶ月単位での延期がある。研究のためには納品に合わせて動物を用意しているから、納品が遅れると動物を殺さないといけない。安定供給していただけると薬剤開発が進む。医療の段階に進めるためにも患者さんに影響が出ないためには安定供給は大事である。

Q：どれくらいの量が必要か？

A：動物実験では一匹あたり 3MBq くらいで、一回の実験で 30 匹から 40 匹使用だから 100MBq くらいが必要。臨床ではもっと量が必要だが基礎実験では数 100MBq あれば十分。

2.4.2 尹 鳳（長岡技科大）

「Extraction of Ra and target fabrication method for neutron irradiation by magnesium carbonate co-precipitation from ThO_2 solution dissolved by thermochemical conversion」

Extraction of Ra and target fabrication method for neutron irradiation by magnesium carbonate co-precipitation from ThO_2 solution dissolved by thermochemical conversion

Feng Yin^{1*}, ZhuoRan Ma¹, Chihiro Tabata^{2†}, Satoshi Fukutani², Mari Toyama², Tomoo Yamamura², Tatsuya Suzuki¹

1. Nagaoka University of Technology
2. Kyoto University,

† Present affiliation: JAEA

1. Background

^{225}Ac is a very promising α -therapeutic radiopharmaceutical isotope.

The primary production methods of ^{225}Ac include:

1. Extract from ^{233}U . ^{233}U generated by $^{232}\text{Th} (n, \gamma)$.
2. $^{229}\text{Th}/^{225}\text{Ac}$ generator. ^{229}Th generated by transmutation.

We proposed the production method of the $^{229}\text{Th}/^{225}\text{Ac}$ generator by neutron irradiation of Ra-228 extracted from Th-232. For this purpose, many kinds of study and developments are required such as **dissolution of ThO_2** , **extraction of Ra**, fabrication of target, separation of Ac, etc.

2. Dissolution experiment and results

2.1 The theory of thermochemical conversion method for dissolving ThO_2

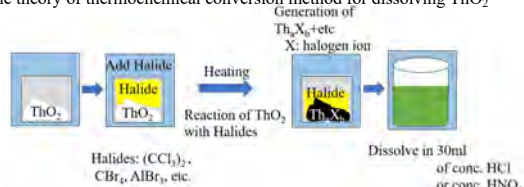
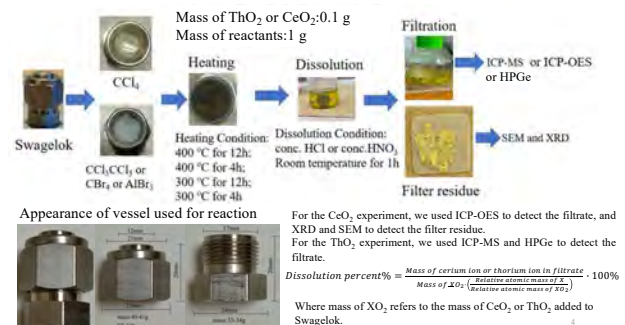


Figure 1. The process of thermochemical conversion method for dissolving ThO_2

The reason for choosing halides is that bromine and chloride ions are easily removed in subsequent precipitation experiments.

CeO_2 always appears as a simulation of tetravalent actinide oxides, we used CeO_2 to do simulation experiments to explore the best reaction conditions.



For the CeO_2 experiment, we used ICP-OES to detect the filtrate, and XRD and SEM to detect the filter residue.
For the ThO_2 experiment, we used ICP-MS and HPGe to detect the filtrate.
Dissolution percent (%) = $\frac{\text{Mass of cerium ion or thorium ion in filtrate}}{\text{Mass of } \text{CeO}_2 \text{ or } \text{ThO}_2 \text{ (relative atomic mass of } \text{CeO}_2 \text{)}} \cdot 100\%$
Where mass of XO_2 refers to the mass of CeO_2 or ThO_2 added to Swagelok.

2.2 Dissolution results of CeO_2 treated by thermochemical conversion

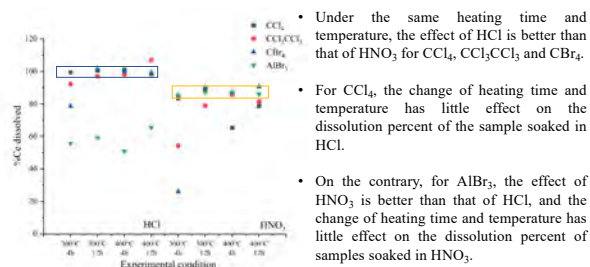


Figure 2. Dissolution rate of CeO_2 treated by thermochemical conversion

2.3 Dissolution results of ThO_2 treated by thermochemical conversion

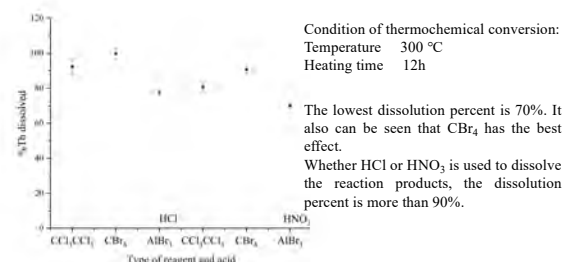


Figure 3. Dissolution rate of ThO_2 treated by thermochemical conversion

3. Precipitation experiment and results

3.1 The theory of magnesium-radium coprecipitation

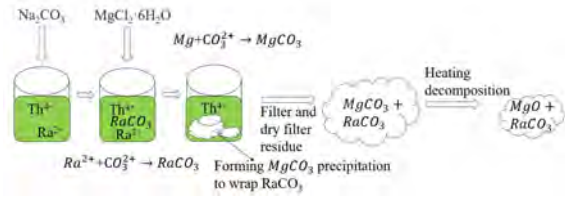


Figure 4. The process of magnesium-radium coprecipitation

Alkaline earth metal elements are prone to losing their outermost two electrons to form divalent cations. We used Ca, Sr, and Ba to simulate the co-precipitation behavior of Ra.

3.2 Effect of different concentrations of alkaline earth metal elements on precipitation

Due to the detection limit of the instrument, we used four concentrations of alkaline earth metal elements, 10^{-4}mol/L , 10^{-3}mol/L , 10^{-2}mol/L , and 10^{-1}mol/L for simulation experiments. In order to allow Mg^{2+} to precipitate as much as possible, excessive Na_2CO_3 is used.

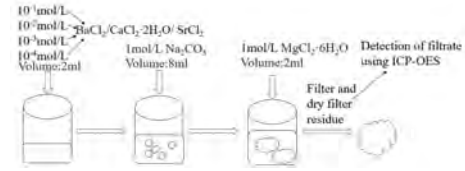


Figure 5. Precipitation experiments with different concentrations of alkaline earth metal elements

3.21 Precipitation percent of alkaline earth metals in different concentrations of alkaline earth metal solutions

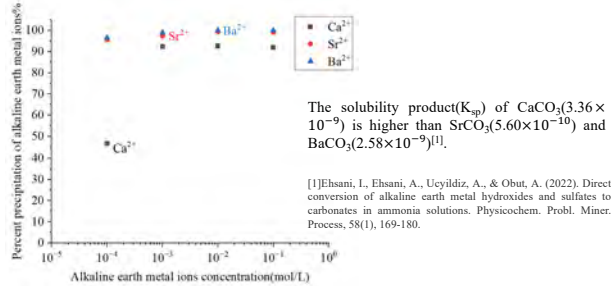


Figure 6. Experimental results of different concentrations of alkaline earth metal

3.3 Exploring the heating temperature and time for converting MgCO_3 into MgO

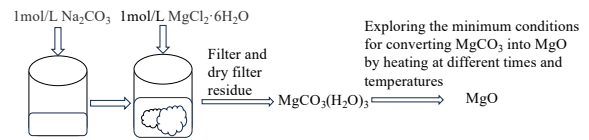


Figure 7. Manufacture and conversion of $\text{MgCO}_3(\text{H}_2\text{O})_3$ into MgO

3.31 Conversion of $\text{MgCO}_3(\text{H}_2\text{O})_3$ into MgO under the same heating time and different heating temperatures

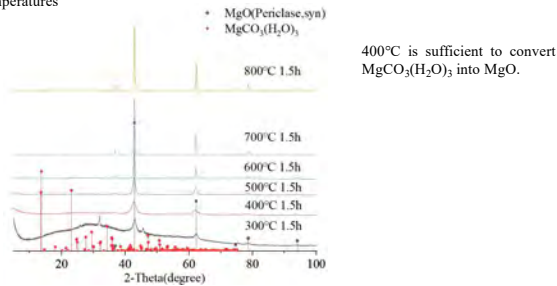


Figure 8. Experimental results of different heating temperatures

3.32 Conversion of $\text{MgCO}_3(\text{H}_2\text{O})_3$ into MgO at the same heating temperature and different heating time

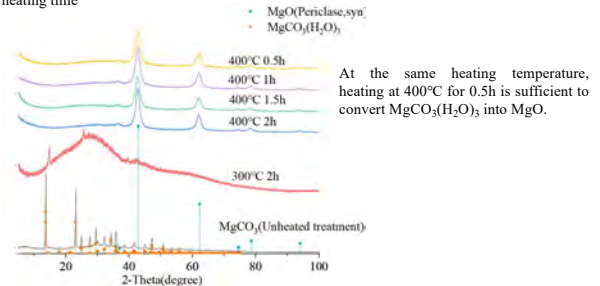


Figure 9. Experimental results of different heating time

3.4 Magnesium-radium coprecipitation

We used four samples for radium and magnesium coprecipitation experiments, as shown in the following figure.

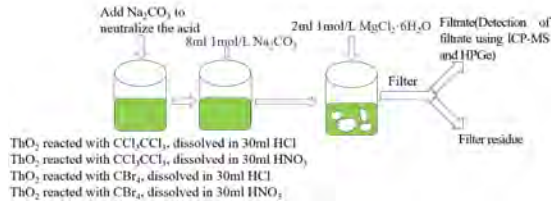


Figure 10. Experimental process of radium and magnesium coprecipitation ¹³

3.41 Changes in ²³²Th Mass in Solution after Radium and Magnesium Coprecipitation Experiment

We also investigated the precipitation of Th by hydrolysis. We found a low co-precipitation condition.

However, excessive amounts of Th exist in the solution in comparison to Ra. The separation of Th by the coprecipitation method is not enough, even at such a low precipitation percent.

Therefore, we concluded remove of Th before precipitation is better.

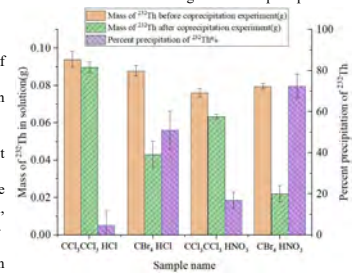


Figure 11. The mass and precipitation percent of ²³²Th in the solution before and after the precipitation experiment

3.42 Radioactivity of ²²⁸Ra in the solution before and after precipitation experiments

Sample name	Radioactivity* ¹ (Before precipitation)	Radioactivity* ² (After precipitation)	Precipitation Percent %
CCl ₃ CCl ₃ HCl* ³	(305.64 ± 11.10)Bq	(4.03 ± 2.02)Bq	98.68 ± 0.73
CCl ₃ CCl ₃ HNO ₃	(319.35 ± 11.35)Bq	(1.47 ± 0.73)Bq	95.46 ± 2.60
CBr ₄ HCl	(392.26 ± 10.95)Bq	(1.36 ± 0.68)Bq	96.53 ± 1.88
CBr ₄ HNO ₃ HNO ₃	(325.87 ± 9.98)Bq	(2.04 ± 0.83)Bq	93.74 ± 2.83

*¹: Before the precipitation experiment, every original sample was 50 ml, therefore, the radioactivity of *¹ is the radioactivity of the original sample of 50 ml.

*²: We only used 5 ml of the original sample for the precipitation experiment.

*³: Only the CCl₃CCl₃ HCl sample was used for precipitation experiments using 50 ml of the original sample.

4. Conclusions

- We confirmed that the ThO₂ can be dissolved by a pretreatment using the thermochemical conversion.

- We have studied the precipitation method for extracting ²²⁸Ra and making targets

- We confirmed that almost all radium has been precipitated

- We found the condition of low precipitation percent of Th

However, removing Th by only the coprecipitation method is insufficient

Thank you for your listening

質疑応答

Q : You only checked target element by using ICP-MS. However, many elements such as Fe, Co and others reserved in reaction. Did you check them?

A : I only checked whether ^{232}Th entered the precipitation. Because radium and magnesium have similar properties, radium will co - precipitate with magnesium. The content of other elements is very low, and due to their different properties, very little enters the precipitation. In addition, due to the high content of ^{232}Th in the solution, it also entered the precipitation. Therefore, we plan to use resin to remove ^{232}Th before the precipitation experiment, and other elements will also be removed.

Q : Why do you use cerium dioxide? I understand cerium dioxide doesn ' t convert to tetrachloride.

A : Because cerium dioxide and thorium dioxide have the same fluorite structure and very similar microstructures, and cerium dioxide always appears to simulate tetravalent actinide oxides, we used cerium dioxide to do simulation experiments to explore the best reaction conditions.

2.5 セッションE

2.5.1 船坂 英之（アトックス）

「ターゲット材料として、濃縮した安定同位体を使う場合の課題」

2023年度 アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門委員会

ターゲット材料として、濃縮した安定同位体を使う場合の課題

2024年3月7日（木）

(株)アトックス
船坂 英之

日本における安定同位体元素の濃縮に関する課題

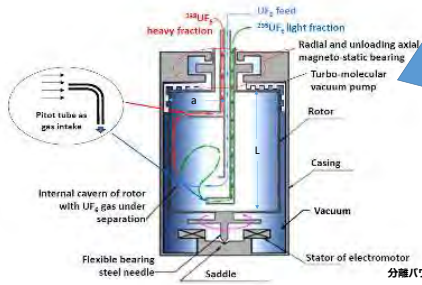
現在の状況について

- 世界において、濃縮された安定同位体元素は、主にロシア、米国、ヨーロッパから供給されている。
- 濃縮された安定同位体元素のkgオーダー以上のものは、遠心分離法、g（グラム）以下のものは、電磁分離法、乃至は、レーザ法でなされている。
- その施設・設備は、ほとんどがU-235等の濃縮で開発されたものの転用である。
- 日本国内で使用されている濃縮された安定同位体元素は、100%海外からの輸入であり、そのほとんどが、ロシア、米国であったが、今後は、米国、ヨーロッパからなるものと思われる。
- 原子力委員会は、「医療用等RI製造・利用推進アクションプラン」を策定し、その中で、「Mo-99/Tc-99mについて、可能な限り 2027 年度末に、試験研究炉等を活用し、国内需要の約 3 割を製造し、国内へ供給する。」と提言。（2022年5月31日付）
- 日本国内における（商用の）安定同位体元素を濃縮できる施設、設備はなく、あえて、国内製造の可能性があるとするば、日本原燃級が有している遠心分離機設備の技術の転用である。

本日の発表内容

- I. はじめに（現在の状況について）
- II. 遠心分離法の対象元素として、⁹⁸Mo/¹⁰⁰Mo
- III. 電磁分離法（カルトン法）、レーザ分離の対象元素として、¹⁷⁶Yb
- IV. まとめ

ロシアの遠心分離機の構造と遠心分離法の対象となる元素の条件



遠心分離法の対象となる元素の条件

- 分母作素用のフィードガスは、分離対象同位体を含む化合物において同一質量数のものが、機数できないこと
- フィードガスは、室温で数torr程度の圧力があること
- フィードガスは、ロータ材料等との反応性がないこと
- フィードガスは、約100℃まで、分解せずに、安定に存在できること

分離パワー $6U_{\text{max}} = \rho D \left(\frac{\Delta M \omega^2 r^2}{2RT} \right) \text{ nL/2}$

遠心分離用の揮発性化合物（クルチャツ研究所）

フッ化物 オキシフッ化物	酸化物	有機金属	希ガス	塩化物 フロン	π-錯体
SiF ₄ , SF ₆ GeF ₄ , SeF ₆ TeF ₆ , MoF ₆ IrF ₆ , WF ₆ CrO ₂ F ₂ , POCl ₃ SiCl ₃ H, NF ₃	OsO ₄ CO ₂	Sn(CH ₃) ₄ , Pb(CH ₃) ₄ Cd(CH ₃) ₂ Zn(CH ₃) ₂ , Zn(C ₂ H ₅) ₂ Ga(CH ₃) ₃	Xe, Kr	TiCl ₄ , GeCl ₄ (CBrF ₂) ₂ BF ₃ , ClF ₃ C ₇ F ₁₄ CF ₄	Fe(CO) ₅ Ni(PF ₃)

同位体分離対象元素（遠心分離法、電磁分離法）ロシア クルチャツ研究所

	III A	IV A	V A	VI A	VII A	VIII A	I B	II B	III B	IV B	VB	VI A	VII B	VIII B		
4周期	Sr	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
5周期	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
6周期	*	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
ランタノイド 系列	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	

遠心分離法

電磁分離法

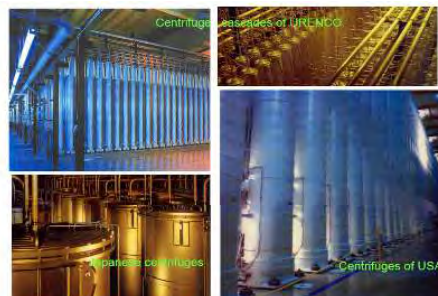
レーザ分離法

ロシアの遠心分離機プラント（ウラル電気化学工場）



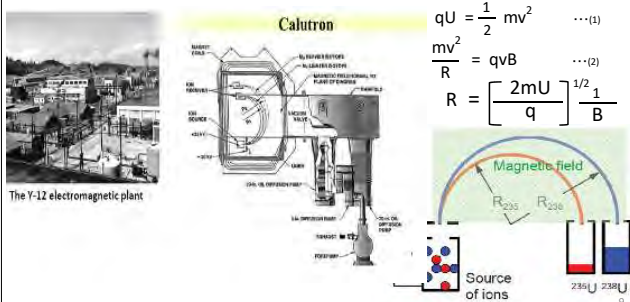
7

URENCO（欧州3ヶ国）、日本、米国の遠心分離機プラント



8

電磁分離法の装置と分離メカニズム



9

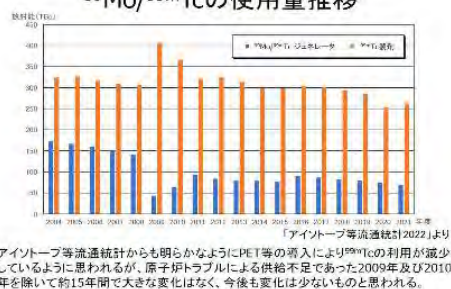
1945年当時の米国Oak Ridgeの電磁分離法の装置



10

⁹⁹Mo/^{99m}Tcの国内使用量の推移

⁹⁹Mo/^{99m}Tcの使用量推移



11

Mo-99の製造方法

国産化方策	技術の概要	現状と課題
原子炉による方法	研究炉 (JMTR) 原子炉内で天然Moに中性子照射を行い、Mo-99を製造 反応： $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	・ 定期検査中の供給不可 ・ 製造量に上限あり（廃炉の予定）
	発電炉 (BWR) 原子炉内で天然Moに中性子照射を行い、Mo-99を製造 反応： $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	・ 規制上の課題あり
加速器による方法	大型加速器 加速器で濃縮Mo-100に中性子照射を行い、Mo-99を製造 反応： $^{100}\text{Mo} (n, 2n) ^{99}\text{Mo}$	・ 初期投資が必要 ・ コスト面の課題
	中小型加速器 加速器で濃縮Mo-100に陽子照射を行い、Mo-99/Tc-99mを製造 反応： $^{100}\text{Mo} (p, x) ^{99}\text{Mo}$ $^{100}\text{Mo} (p, x) ^{99m}\text{Tc}$	・ 製造量が限定される ・ 製薬施設との一体運用前提
	その他 反応： $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$ $^{100}\text{Mo} (\gamma, n) ^{99}\text{Mo}$	・ 技術面、経済面の検討中

12

監修: 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター 塚田和明

電子線加速器による⁹⁹Mo/^{99m}Tc製造における年間必要Mo-100量の概算

前提条件: 電子線照射時間: 20時間/日、週5日、年間200日製造 電子線形加速器を利用した医療用放射性核種の製造 (2021)

との記載から、月～金曜日に毎日照射を行うとし、一般的な病院での利用方法および化学分離・回収 (化学分離・試料回収は休日も実施) の効率などを考慮すると、初期投資と毎年の必要Mo-100量は以下であると推測される。

1) 1週間の照射に400 gターゲット x 5セット (ターゲットA,B,C,D,E 各400g) : **2kg**

2) 分離時のロス率 平均2%として*1: 200回の化学分離 400%: **1.6 kg**
*199%回収は不可能で一般的には97~98%が開発目標

3) 試料回収・再調整のロス率平均3%として*2: 200回の試料再調整 600%: **2.4 kg**
*2小分けした試料からの回収は更に難しく効率低下のため

4) ⁹⁹Mo/^{99m}Tcのジェネレータを病院に配布し、回収、照射試料の再調整に必要な日数: 2.5~3週間
・照射後の上記化学分離・ジェネレーター製造と輸送: 3~4日
・病院での使用期間 (⁹⁹Mo 半減期 65hrs): 1週間 (weekday)
・病院からのジェネレーター輸送・回収: 2~3日
・照射試料の再調整: 2日 →初期投資には1) の2 kgを3~4セット必要 (予想スケジュール参照)

・初期投資: 1) から 6 kg必要
・毎年の追加量: 2) 3) から 平均4kg
(毎年の追加量は、化学収率・回収効率のロスとして合計5%を考えているが、化学収率・回収の自動化手法の効率は開発要素のため3~8%で変動すると考えられる)

前提条件と病院でのジェネレータ使用を考慮した照射・分離・使用・回収サイクル予測

	1 日	2 日	3 日	4 日	5 日	6 日	7 日	8 日	9 日	10 日	11 日	12 日	13 日	14 日	15 日	16 日	17 日	18 日	19 日	20 日	21 日	22 日	23 日	24 日	25 日	26 日	27 日	28 日	29 日	30 日
ターゲット 1-A	照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																								
ターゲット 1-B		照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																							
ターゲット 1-C			照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																						
ターゲット 1-D				照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																					
ターゲット 1-E					照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																				
2セット目							照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																		
3セット目								照射	溶解・抽出・製品化	搬送	病院での使用	病院からの回収	照射試料再調整																	

電子線照射 溶解・抽出・製品化 搬送 病院での使用 病院からの回収 照射試料再調整

¹⁰⁰Moの国内製造における目標価格

➢ 最終の目標単価を設定するための一次試算 (セキュリティの考慮については、次の段階で実施)

- 市場規模の150億円の80%を製造コストとする。その約10%、12億円を、Mo-100約10kg製造に充てるとすると、12万円/g
- 一方、「医療用テクネチウムの国内製造に関する提言」では、Mo-100価格を 2 億5000万円/kgとしている。25万円/g
- 目標単価は、12万円~25万円/g
- 濃縮以外の主な費用としては、金属Mo購入費用、六フッ化Mo変換、Moへの再転換、これらの費用を含む (因みに、MoF₆ 13000円/g (試薬グレード))

天然組成のMoの遠心分離機による同位体濃縮 試算条件

(1) 天然Moの同位体組成 (原料)

Mo同位体質量数	天然存在比率 (原子%)	MoF ₆ の分子質量
92	14.77	206
94	9.23	208
95	15.90	209
96	16.68	210
97	9.56	211
98	24.19	212
100	9.67	214

(2) 濃縮度および生産量の目標

濃縮度 Mo-98 (90%以上) Mo-100(90%以上)
生産量 それぞれ約10kg/年

(3) 計算モデル (カスケード)

遠心分離機1台の処理量と分離能力は小さいため、遠心分離機を多数台組み合わせ、分離過程を繰り返すことにより、所定の濃縮度の製品を生産する。このような多数の遠心分離機の組み合わせをカスケードと呼ぶ。

本検討でのカスケードは以下の通り。
遠心分離機 150 台
濃縮段 8 段/ 回収段 8 段

¹⁷⁷Luの製造プロセス 例

Direct route

$$^{176}\text{Lu} (n, \gamma) ^{177}\text{Lu} + ^{177m}\text{Lu}$$

2.59 % $T_{1/2} = 6.89 \text{ days}$ $T_{1/2} = 160.4 \text{ days}$

In-Direct route (carrier-free-route)

加速器 $^{176}\text{Yb} (d, x) ^{177}\text{Lu}$
12.7 % → 99.9 %

原子炉 (JRR-3等) $^{176}\text{Yb} (n, \gamma) ^{177}\text{Yb} \xrightarrow{\beta} ^{177}\text{Lu}$
 $T_{1/2} = 1.9 \text{ hours}$

¹⁷⁶Yb (n, γ) ¹⁷⁷Yb → ¹⁷⁷Lu における¹⁷⁶Ybターゲット量について(1/2)

前提条件

- 前立腺がんの治療薬として、2022年3月に承認された薬剤 (Pluvicto: ¹⁷⁷Lu-PSMA-617)の使用を考慮
- 日本における前立腺がん患者数: 年間9.5万人 (2019年)
- Pluvicto (¹⁷⁷Lu-PSMA-617) 投与量: 7.4 GBq x 最大 6回 = 44.4 GBq
- ¹⁷⁷Lu製造量 (計算値)
熱中性子: 1E14 n cm⁻²s⁻¹
照射時間: 14日
¹⁷⁶Yb濃縮度: 99.9%
¹⁷⁷Lu: 550GBq/gYb(3 days after EOB)
- 濃縮¹⁷⁶Yb ターゲットの再使用回数: 5回/年
- Yb/Lu分離後のYb回収率: 95%
- ¹⁷⁶Yb価格 (99.6%以上 2023年度見積り結果): 8300円/mgYb

K.Hashimoto, K.Tsukada (JAEA), private communication

^{176}Yb (n, γ) $^{177}\text{Yb} \rightarrow ^{177}\text{Lu}$ における ^{176}Yb ターゲット量について(2/2)

前立腺がん患者のうち、現在の医療で救うことができなかった人へのみ投与とした場合 約13000人/年)
検討結果

- ^{177}Lu 年間必要量
 $44.4 \text{ GBq} \times 1.3\text{万人} \approx 580 \text{ TBq}$
- Pluvicto (^{177}Lu -PSMA-617) 投与量: $7.4 \text{ GBq} \times \text{最大 6回} = 44.4 \text{ GBq}$
- ^{176}Yb 年間必要量 $580\text{TBq}/550\text{GBq製造量 (計算値)} = 1000 \text{ g}$
再使用回数を5回とすると、実質使用量は、 $1100/5 \approx 200 \text{ g}$
初期Ybターゲット購入額は、 $200 \times 8300 \text{ 円} \times 1000 = 16.6 \text{ 億円}$
- 1年間に補充する(損失)するYb量
 $200 \text{ g} \times 0.05 = 10 \text{ g}$
 $10 \text{ g} \times 8300 \text{ 円} \times 1000 = 0.83 \text{ 億円}$

K.Hashimoto, K.Tsukada (JAEA), private communication

19

まとめ

- 医療用RI製造のサプライチェーンにおいて、ターゲット材料として、安定同位体元素を濃縮したものを使う場合、そのすべてが、海外からの輸入である。
- 国内には、商用規模での安定同位体を濃縮のための施設、設備はなく、唯一商用規模での供給を可能とするのは、日本原燃殿が、有している遠心分離機の技術の転用である。

一般的には、遠心分離法の対象となる元素の方が、安価で、量的にもkg以上の供給が見込めるが、その対象となる元素は、限られており、電磁分離法、レーザ分離法と併用しない限り、すべてに元素を対象とすることはできない。

また、電磁分離法、レーザ分離法では、年間に供給される量は、多くても100 g程度であると推定される。そのため初期インベントリ量を確保するための時間が必要となる可能性も考慮しておく必要がある。

20

質疑応答

Q：Mo の遠心分離に関して化学形は何を想定しているか？

A： UF_6 と同一の構造の MoF_6 を想定している。

Q：Mo のフッ化物は酸素との反応性があり、ピュアな化学形は難しくないか？

A：フッ化物は U に次いで扱いやすい。ロシアもヨーロッパも Mo フッ化物を十分供給できる。既に実証されている。

Q： UF_6 の同位体分離をするときに、 UF_4 、 UF_5 等の他の化学形が沈着していく問題があった。ウランに関するこの問題は解決されたか？

A：確かにローターとケーシングの間に沈着する問題があった。停電でシステムが落ちてしまうと沈着が取れない問題については、10 年以上にかけて克服したと言われている。

Q：日本原燃が持っている遠心分離機のことを言及されたが、Mo の同位体分離を行おうとするなら Mo 用に専用の遠心分離器を作る必要があるか？

A：その通り。

Q：電磁分離法で分離するとしたら Lu-176 を分離すると目的のもの以外も混ざってくる。小型の装置では何回の分離を行う必要があるのか？

A：粗分離の後に精密分離が必要である。

Q：そのような多段プロセスでは量が取れないのでは？

A：電磁法なら簡単に分かれる。もっと小さくても分けられる。大きい装置では電荷を加えて空間電荷効果を抑えるなど工夫がなされている。

2.5.2 出光 一哉（東北大金研）

「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

代表機関
東北大学(永井 康介)

日本原子力研究開発機構(前田 宏治)

再委託機関
九州大学(出光 一哉、稲垣 八穂広)
長岡技術科学大学(鈴木 達也)
日本核燃料開発株式会社(樋口 徹)

1

研究目的及び目標、研究計画に対する進捗状況と課題等について 一目的と目標一

○大熊分析・研究センターは、1Fの廃止措置を着実に進めていくために必要な分析・研究を実施する施設で、第2棟では、燃料デブリの分析を行う。

○燃料デブリ分析は、取り出し方法の検証、臨界、輸送、保管の観点のほか、将来の処理・処分の方策を検討する際に必要。



- 施設管理棟：事務所（2019年9月運用開始）
- 第1棟：（建設中）低・中線量のガレキ等の分析
- 第2棟：（設計中）燃料デブリ等の分析を実施

○第2棟では、第1棟のガレキ等の分析対象となっている38核種のほか、金属成分や有機物、密度、硬さなど、様々な物性測定、化学分析を考慮。

○特にU、Puといったアクチノイド核種やFPの分析は重要となるが、1Fデブリの分析には試行錯誤が予想され、またこれを適切に行うことができる技術者が極めて少ない現状。

○模擬デブリや照射済み燃料を用いてこれら核種の分析技術を開発し、併せてホットラボで活躍する若手研究者・技術者の裾野を広げ、その育成を行うことを目的とする。

業務計画

(1) 模擬燃料デブリの溶解特性評価

① 溶解試験(連携先: 原子力機構)

模擬物質(照射済燃料含む)のアルカリ溶解試験、不溶解残渣分析

② 熱化学転換法の研究(再委託先: 長岡技大)

熱化学転換法(塩化物化)

(2) 燃料デブリの主要分離・分析プロセスの確立

① ICP-MS/MS測定(連携先: 原子力機構)

ICP-MS(Agilent8900)を用いたアクチノイド核種等の定量

② 前処理分離技術に関する研究(再委託先: 長岡技大)

ICP-MS/MS測定の前処理分離試験

3

業務計画(続き)

(3) 模擬燃料デブリの作製

① 模擬燃料デブリの作製に関する研究(再委託先: NFD)

UO₂、ZrO₂、CeO₂等にFP成分(Nd、Gd)やコンクリート成分(SiO₂、Ca)を添加した模擬燃料デブリを試作

② 共沈法による模擬燃料デブリの作製に関する研究

共沈法を用いて作成したU-Zr-Fe-O系模擬燃料デブリのメスパウアー分光および透過電子顕微鏡観察

(4) ICP-MS/MSによるアクチノイド元素分析に係わる基礎データの取得

① ICP-MS/MS装置整備

反応ガス(O₂、NH₃、N₂O、CO₂)を使用した際の基礎特性データ収集

② 干渉イオン除去に関するデータ収集(再委託先: 長岡技大)

デブリの溶解法や分離法を考慮したICP-MS/MS分析スキーム

4

業務計画(続き)

(5) 廃棄物処分における燃料デブリの安定性研究(再委託先: 九州大学)

① 模擬燃料デブリ試料の浸出試験

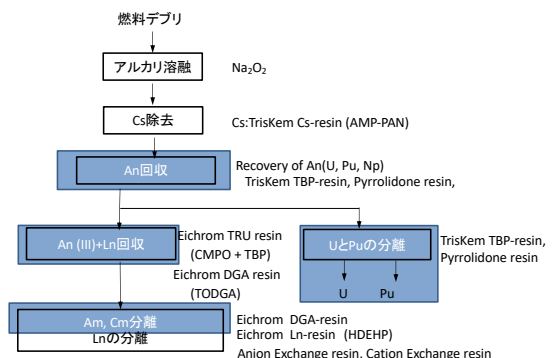
模擬デブリのマイクロチャンネル装置による化学的耐久性(溶解/浸出挙動)評価

(6) 人材育成

若手研究者や学生の研究業務に参画による人材育成

5

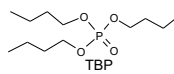
分離フロー



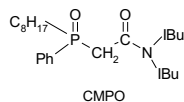
6

研究に用いる含浸樹脂

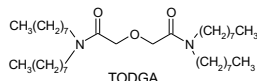
TBP-resin : Triskem
TBP-impregnated resin



TRU-resin : Eichrom
CMPO-impregnated resin
CMPO dissolved in TBP



DGA-resin : Eichrom
TODGA-impregnated resin



7

「ふげん」使用済み燃料を用いた試験

「ふげん」高燃焼度MOX燃料
平均燃焼度42.0 GWd/t、最高線出力43.2 kW/m、Pu富化度2.90%



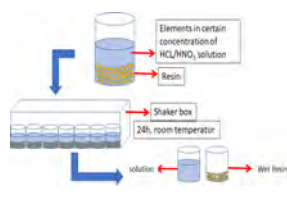
Dissolution by H₂O + 10 M HNO₃
(to be 6 M HNO₃)

溶解後のつぼろ過後のろ紙
照射済み燃料の完全溶解を確認
FE-SEMによりろ紙を分析予定(2/27)

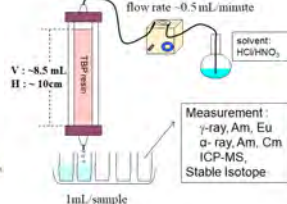
8

化学分離試験

Batch Experiment



Chromatographic Experiment



9

An分離フロー結果

Recovery of U and Pu

4M HCl: Pu, 0.1M HNO₃: U

Recovery of An(III) & Lns,

Acid Conversion

4M HNO₃ → 1M HCl

Separation of Am/Cm

DGA-resin

Concentration / arb. units

Effluent Volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

Concentration / arb. units

Effluent volume / mL

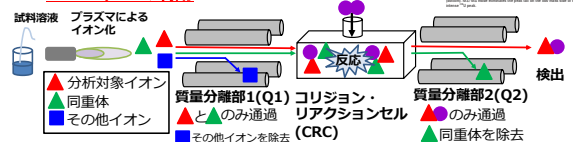
ICP-MS/MSによるアクチノイド元素分析に係る基礎データの取得

➤ 大熊施設の本格稼働前の事前訓練・教育のため東北大学の施設を利用

➤ ICP-MSを使用した場合の留意事項

- ・スペクトル干渉：測定対象のm/zに近い多量の原子等による干渉
(²³⁷Np近傍の²³⁸U)
- ・同重体干渉：(²³⁸U, ²³⁸Pu) (²⁴¹Pu, ²⁴¹Am) (²⁴²Pu, ²⁴²Am, ²⁴²Cm) 等
- ・多原子イオン干渉：溶媒等との元素との反応物との干渉
(²³⁸U, ²³⁷Np)

ICP-MS/MSの利用



- ・CRCに導入するガスとイオンの反応性を利用し、分子イオンや同重体干渉の低減が可能

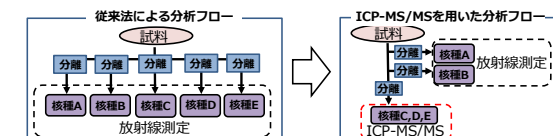
11

ICP-MS/MSによるアクチノイド元素分析に係る基礎データの取得

アクチノイド核種分析

→ 作業安全性、臨界安全性、核不拡散性などの観点から分析が不可欠
分析対象となるアクチノイド核種

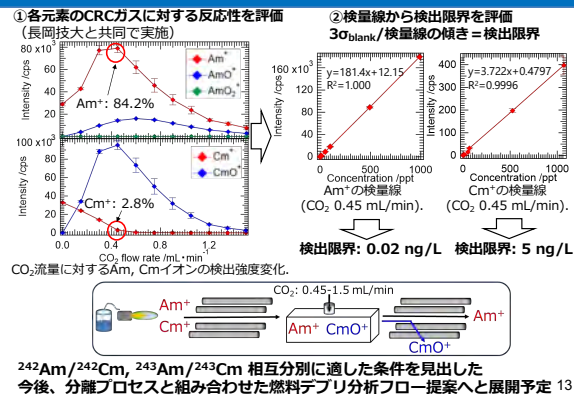
元素	233	234	235	236	237	238	239	240	241	242	243	244	245	246
U														
Np														
Pu														
Am														
Cm														



ICP-MS/MSによるアクチノイド核種分析手法の開発

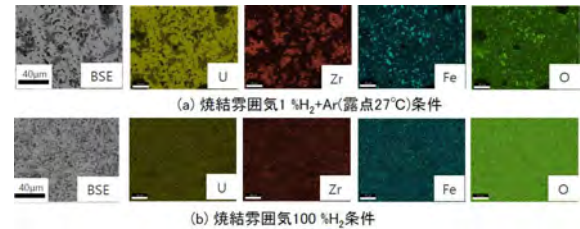
12

ICP-MS/MSによるアクチノイド元素分析に係る基礎データ (例)



(3) 模擬燃料デブリの作製(NFD)U-Zr-Fe-O試料の作製

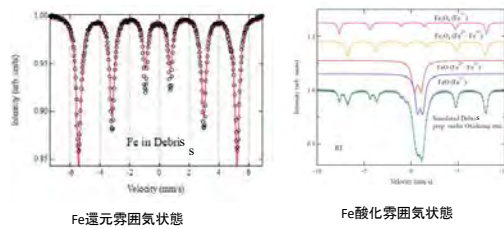
SEMを用いた表面分析
Fe還元雰囲気状態: α 金属相
Fe酸化雰囲気状態: Fe酸化物相



14

U-Zr-Fe-O試料の微細構造観察(東北大) (1/2)

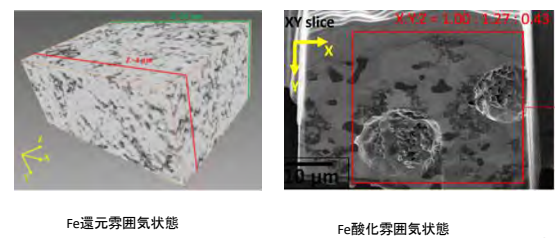
メスbauer分光を用いてFe析出物の化学形態を同定した。
Fe還元雰囲気状態: α 金属相
Fe酸化雰囲気状態: Fe_3O_4 及び FeO



15

U-Zr-Fe-O試料の微細構造観察(東北大) (2/2)

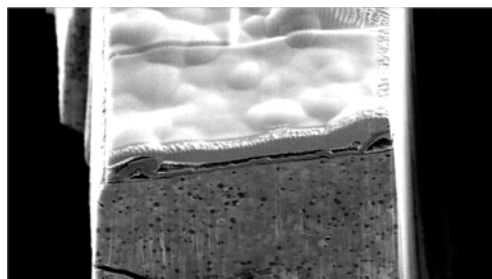
3次元SEM像解析による。
Fe還元雰囲気状態: 細かい α Fe金属相の析出
Fe酸化雰囲気状態: Fe酸化物相の析出とVoid



16

U-Zr-Fe-O試料の微細構造観察(東北大) (2/2a)

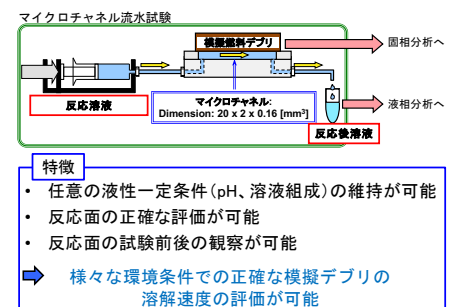
連続断層SEM像 Fe還元雰囲気状態



形態学的特徴: 空隙やクラックはほとんどない。

17

廃棄物処分における燃料デブリの安定性研究(再委託先: 九州大学) ①模擬燃料デブリ試料の浸出試験



18

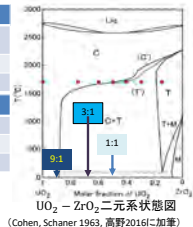
廃棄物処分における燃料デブリの安定性研究(再委託先:九州大学)
①模擬燃料デブリ試料の浸出試験

マイクロチャンネル流水試験 (U, Zr, Ca) O₂ 試料

	(U _{1-x-y} , Zr _x , Ca _y)O ₂ 試料			
試料の原子比	U:Zr=1:1	U:Zr=3:1	U:Zr=9:1	U:Zr=Fe=3:1:1
試料密度 g/cm ³	6.96	8.34	9.94	8.33
空隙率 %	13 ± 5	13 ± 5	4 ± 2	13 ± 5

	(U _{1-x-y} , Zr _x , Ca _y)O ₂ 試料			
試料の原子比	U:Zr=1:1	U:Zr=3:1	U:Zr=9:1	
試料密度 g/cm ³	8.56	10.27	10.93	
空隙率 %	<1	<1	<1	

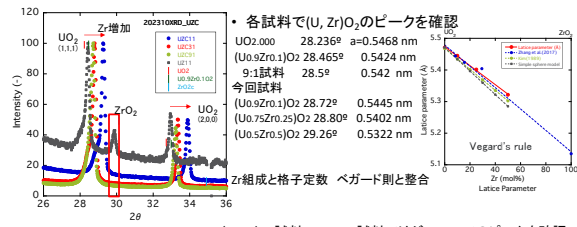
SEM/EDS観察の結果
(U, Zr)O₂試料はU:Zr=9:1で2相に分相
(U, Zr, Ca)O₂試料は全ての割合で単相



19

模擬燃料デブリ試料 (Ca含有)

(U_{1-x-y}, Zr_x, Ca_y)O₂ 試料 XRD



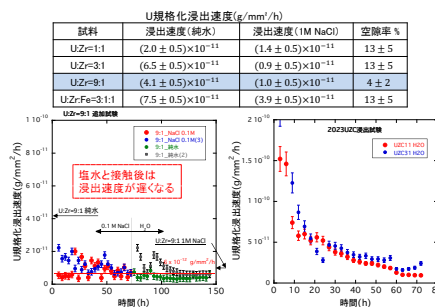
各試料で(U, Zr)O₂のピークを確認
UO₂ 000 28.236° a=0.5468 nm
UO₂ 002 28.465° 0.5424 nm
9:1試料 28.5° 0.542 nm
今回試料
(U_{0.9}Zr_{0.1})O₂ 28.72° 0.5445 nm
(U_{0.75}Zr_{0.25})O₂ 28.80° 0.5402 nm
(U_{0.5}Zr_{0.5})O₂ 29.26° 0.5322 nm
Zr組成と格子定数 ペガード則と整合

XRD解析結果まとめ
• (U, Zr)O₂試料 U:Zr=1:1試料ではジルコニアのピークを確認
(U, Zr, Ca)O₂試料にはピーク見られず
数%のカルシウムで固溶限が拡大

20

廃棄物処分における燃料デブリの安定性研究(再委託先:九州大学)
①模擬燃料デブリ試料の浸出試験

超純水における規格化浸出速度



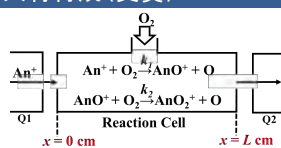
試料	浸出速度 (純水)	浸出速度 (1M NaCl)	空隙率 %
U:Zr=1:1	(2.0 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	(1.4 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	13 ± 5
U:Zr=3:1	(6.5 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	(0.9 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	13 ± 5
U:Zr=9:1	(4.1 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	(1.0 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	4 ± 2
U:Zr=Fe=3:1:1	(7.5 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	(3.9 ± 0.5) × 10 ⁻¹¹	13 ± 5

人材育成

令和元年度	令和2年度	令和3年度	令和4年度	令和5年度	
	9月 特別研究生 (博士課程)			6月 (就職)	
	9月	特別研究生 (博士課程)			
		特別研究生 (博士課程)		10月	
		特別研究生 (修士課程)		10月	
		特別研究生 (修士課程)			
	5月 (JAEA博士研究員)	4月 (JAEA職員として継続)			

- 特別研究生4名(博士課程3名、修士課程1名)
博士課程1名はR5年度7月から東工大研究員として採用
• IKHWAN, Fauzia Hanum, et al. Behaviors of actinides in chromatographic separation by using TBP resin in nitric acid solution and hydrochloric acid solution. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 2023, 1-9. 他
- 博士研究員1名(R4年度からJAEA職員に採用)
• H. Kazama, et al., "Reaction of Np, Am, and Cm ions with CO₂ and O₂ in a reaction cell in triple quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometry", *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 38, 8 (2023) 1676-1681.
• 風間裕行, 小無健司, 鈴木達也, 関尾佳弘, 前田宏治, 小山真一, 阿部 千景, 永井 康介, 「ICP-MS/MSのリアクションセル内におけるアクチノイド気相反応の反応定数評価」, 日本放射化学会第67回討論会(2023), 広島大学, 2804 (2023), 「若手優秀発表賞」.

人材育成(受賞)



• 反応ガスの流量(Φ)を変数とした記述
リアクションガス流量→衝突数に影響
$$\frac{d[An^+]}{d\Phi} = -k_1 [An^+]$$
$$\frac{d[AnO^+]}{d\Phi} = k_1 [An^+] - k_2 [AnO^+]$$
$$\frac{d[AnO_2^+]}{d\Phi} = k_2 [AnO^+]$$
$$\Phi: \text{リアクションガス流量}$$

反応セルの出口でのイオンの変化について上式が成り立つ

JAEA若手研究員が中心となり、取得したアクチノイド基礎データを解析し気相反応速度論の手法を用いて独自のモデルを開発した。
本成果は分析の専門誌であるJournal of Analytical Atomic Spectrometryに掲載された。
また、日本放射化学会第67回討論会で発表し「若手優秀発表賞」を受賞した。

- H. Kazama, K. Konashi, T. Suzuki, S. Koyama, K. Maeda, Y. Sekio, T. Ohnishi, C. Abe, Y. Shikamori and Y. Nagai, "Reaction of Np, Am, and Cm ions with CO₂ and O₂ in a reaction cell in triple quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometry", *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 38, 8 (2023) 1676-1681, DOI: 10.1039/d3ja00136a
- 風間裕行, 小無健司, 鈴木達也, 関尾佳弘, 前田宏治, 小山真一, 阿部 千景, 永井 康介, 「ICP-MS/MSのリアクションセル内におけるアクチノイド気相反応の反応定数評価」, 日本放射化学会第67回討論会(2023), 広島大学, 2804 (2023), 「若手優秀発表賞」.

質疑応答

Q：Ca 添加の酸化物はどの程度の濃度で単相になっているのか？

A：Ca の量は Zr の 10% 程度添加したものを使用している。全体としては Ca の量は数%。
ZrO₂ でも同じだが Ca を入れて固溶限が広がることが知られている。

Q：Ca の添加で U が酸化されているのか？

A：Ca の添加で酸素が多めの UO₂ で、6 価が混ざっていると考えられる。

Q：Ce の場合、塩水に溶けやすいがウランは溶けにくいとのことだがその理由は？

A：理由はよくわかっていない。現時点での想像では、U あるいは Zr が塩化物相を表面に生成し溶出速度が遅くなるが、Ce ではそのような現象が生じないということ。

Q：分析する予定は？

A：溶解量は年間 nm レベル。塩化物層が形成していてもそれよりも非常に薄い。表面に塩素があるかは EDX でも測定できない

2.6 セッションF

2.6.1 阿部 穰里（広大先進理工）

「アクチノイド化合物に適応可能な高精度相対論的多配置電子相関法の開発」

2023年度
「アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門研究会」
2024年3月7, 8日 京都大学原子力複合研究所・オンライン

アクチノイド化合物に適応可能な 高精度相対論的多配置電子相関法の開発

89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

広大： 阿部穰里・野田紘平・増田康人・櫻野理子
都立大：波田雅彦・中谷直輝・吉田均・佐藤有汰留・岩室寿美果

アクチノイド化合物をターゲットとする背景

福島第一原発事故による放射性廃棄物

燃料成分 (UO₂)、燃料被覆管 (Zr)、制御棒材料、原子炉構造材料、海水の注水、燃料デブリ、アクチノイド化合物の混合物

実験研究による燃料デブリの性質解明の難しさ

高い研究コスト	安全性確保が困難
測定の難しさ	研究施設の不足

理論計算によるアクチノイド化合物の化学的・物理的性質の解明への期待

[1] JAEA "Characterization of fuel debris" <https://www.jaea.go.jp/english/04/ntokai/fukushima>

アクチノイド化合物の理論計算における問題点①

電子相関理論について

軌道が離散的
→ 1つの電子配置が重要

単参照電子相関理論

軌道が(擬)縮退
→ 複数の電子配置が重要

多参照電子相関理論

アクチノイド原子：d軌道やf軌道が擬縮退
→ 多参照電子相関理論が必要
(例) CASPT2, MRCI, MRCC

アクチノイド化合物の理論計算における問題点②

アクチノイドの原子番号：Z = 89 ~ 103 (重元素)

× 非相対論
× 低精度相対論法
○ 2成分近似法 (高精度)
→ 高精度相対論法が必要

多参照電子相関理論と高精度相対論法を同時に取り扱える実用的なプログラムの開発を実施

[2] J. Seino et al, Chem. Phys. Lett. 461, 2008, 327-331

理論① 多参照電子相関理論 CASPT2法

二次空間

完全活性空間 (CAS)

$$C_1 \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \end{pmatrix} + C_2 \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \end{pmatrix} + C_3 \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \end{pmatrix} + \dots + C_N \begin{pmatrix} \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \\ \uparrow\downarrow \end{pmatrix}$$

不活性空間 $\Phi_1, \Phi_2, \Phi_3, \dots, \Phi_N$

CASCI法

$$|0\rangle = \sum_i^N c_i |\Phi_i\rangle$$

CAS内で取りうる全ての電子配置に対して、線形結合をとり、配置係数Cを変分的に決定

CASPT2法

0次波動関数 $|0\rangle$ からさらに1,2電子励起した配置を摂動的に考慮する方法

理論② 4成分法と厳密2成分法の比較

4成分Dirac法

$$H_4^{\text{Dirac}} \Psi_4 = E \Psi_4$$

ユニタリー変換

$$U^\dagger H_4 U \approx \begin{pmatrix} H_2^+ & 0 \\ 0 & H_2^- \end{pmatrix}$$

厳密2成分法

$$H_2^+ \Psi_2 = E^+ \Psi_2$$

	4成分Dirac法	厳密2成分法(X2C法)
得られる解	電子解と陽電子解	電子解
計算コスト	高い	低い
計算の正確性	高い	4成分法とほぼ同等

厳密2成分法：精度を落とさずに低コストで計算可能

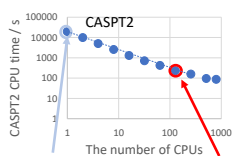
[3] M. Hayami et al, J. Chem. Com. 39, 27, 2333

相対論CASPT2プログラム：GitHubで公開準備中

K. Noda @HU

https://github.com/RQC-HU/dcaspt2_input_generator

Parallelization efficiency
in CASPT2 (UO_2^{2+})



1 core
5.5
hours

MPI
128 cores
4 mins



GUI program to select active spaces
(core, inactive, ras1, ras2, ras3, secondary)

CASPT2プログラムの応用研究

8

アクチノイド

樫野さん

89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

アクチノイドの分離：
フェナントロリン等の
配位子が使用

分離メカニズムの解明：
アクチノイド化合物の
電子状態の理解が重要



キュリウムフェナントロリン錯体

質疑応答

C：今まで分子特有の低エネルギー側の問題を解決できなかったが、Cm 側からの解決に近づいたと考えている。

Q：この計算はどの程度時間が掛かったのか？サイズ依存性は？

A：70 個程度の励起状態に対して、CASPT2 計算している。10 コアの並列計算で 1 個の丸（励起状態）を計算するのに 5 時間程度かかったが、この時間数は CAS（完全活性空間）をどう取るかに依存する。今回 10 個のスピンオール分、f しか含めていないが、s、p を含めたりすると計算量は非常に大きくなる。その点を含めてどのように取り扱うかは課題で取り組んでいる。

Q：設定のところで f と d を取り扱うのも考えているのか？

A：このテーマではないがそのような計算対象もあるのではないかと考えている。

Q：普通に計算をすると 3 価が安定なのはわかっているが、f-f 遷移した時に他の価数の状態が効いてきた可能性があるとする、他の価数で計算することはどうか？

A：フェナントロリン配位子で電子移動によって 4 価になることも考慮した結果ないとしている。

Q：配位子側で色々な電子配置を考えないといけないだけか？

A：低エネルギー電子がフェナントロリン側に移動することは含めることは今後できそう。

Q：原子のサイズだけで配位子を変えた時に、計算した時にスペクトルがちゃんと動いてそれが対応してるのか見えたら良いかなと。f-f 遷移のシフトを考えたりできたら

面白いですね。

A：ありがとうございます。

2.6.2 神戸 振作 (JAEA 先端研)

「金属間U化合物 URu_2Si_2 のキラル超伝導」

Chiral superconductivity in URu_2Si_2

ASRC/JAEA

S. Kambe

URu_2Si_2 Superconductivity under "Hidden order (HO)"

2

Subject 1
**Symmetry of
Hidden order (HO) state**

Possible space groups of
HO state

Subject 2
Symmetry of superconducting state

Chiral **d** wave superconductor ?
 $\mathbf{d} \sim k_z(k_x + ik_y)$

E. Hassinger PRB 2008

State of Superconducting pair electrons

Pair wave function $\Psi_{\text{pair}} = g(\mathbf{k})\chi_{12}$

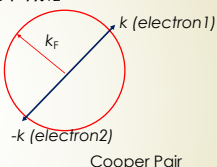
$g(\mathbf{k})$: orbital state

χ_{12} : spin state

Pauli's principal for
permutation
 $g(\mathbf{k})\chi_{12} = -g(-\mathbf{k})\chi_{21}$

$g(\mathbf{k}) = g(-\mathbf{k}) \Rightarrow \chi_{12} = -\chi_{21}$ (singlet state)

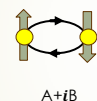
$g(\mathbf{k}) = -g(-\mathbf{k}) \Rightarrow \chi_{12} = \chi_{21}$ (triplet state)



Cooper Pair

Chiral superconductivity

Schematic image of chiral Cooper pairs

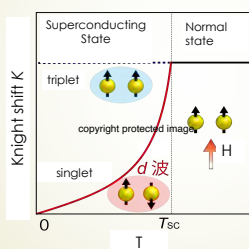


Mirror

Time reversal symmetry (TRS) is broken locally. However, as A+iB and A-iB states are degenerated, TRB appears to be preserved as bulk, but TRB effect can be found only at the surface.

NMR Knight shift: sensitive to the spin state

$K(T) = A \chi_{\text{spin}}(T) + K_{\text{orb}}$
A: hyperfine coupling constant



Spin Singlet

Spin Triplet

H. Tou et al JPSJ2005

Possible gap function for singlet case in URu_2Si_2

Gap function of for singlet with D_{4h} symmetry

Representation	Basis function	Node
A_{1g}	$1, k_x^2 + k_y^2, k_z^2$	Full gap
A_{2g}	$k_x k_y (k_x^2 - k_y^2)$	Line (V)
B_{1g}	$k_x^2 - k_y^2$	Line (V)
B_{2g}	$k_x k_y$	Line (V)
$E_g(1, 0)$	$k_x k_z$	Line (V+H)
$E_g(1, 1)$	$k_z (k_x + ik_y)$	Line (V+H)
$E_g(1, i)$	$k_z (k_x + ik_y)$	Line (H)+Point

V: vertical, H: horizontal

Angle dependence of
thermal conductivity and
specific heat suggest
chiral $E_g(1, i)$



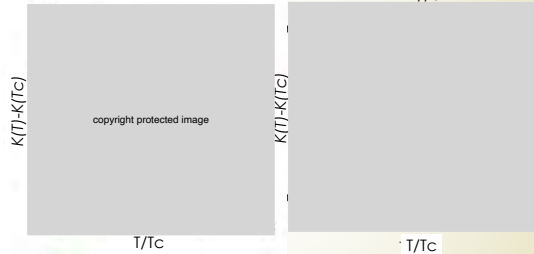
Node structure of chiral d-wave $E_g(1, i)$
S. Kittaka et al JPSJ 2016

7

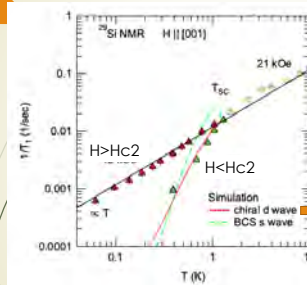
T-dependence of Knight shift in URu_2Si_2

T. Hattori et al PRL2018, JPSJ 2016

H//a



A decrease Knight is observed in the SC state for H//c

T-dependence of $1/T_1$: sensitive to orbital state

No coherence peak at T_c
 $1/T_1 \propto T^3$ in the SC state (H//c)
 $\Rightarrow$ Nodes of Gap

$1/T_1 \propto T$ (Korringa relation)
 in the normal state
 $\Rightarrow$ Fermi-liquid state

chiral d-wave $E_g(1, i)$

9

Absence of Knight shift decrease at T_c for H//a

Spin-triplet



Unlikely since d-vector should be along the c-axis,
 then spins are in the basal plane $\Rightarrow$
 may be inconsistent with the small χ_{spin}^a

Spin-singlet with strong **anisotropic** K_{spin} **thus** χ_{spin} 

$$\frac{K_{spin}^c}{K_{spin}^a} \sim \frac{\chi_{spin}^c}{\chi_{spin}^a} > 20$$

Field angle dependence of g-factor from dHvA



M.M. Altarawneh et al PRL 2012

$$\chi_{spin}^c / \chi_{spin}^a = (g_c / g_a)^2 \sim 1000$$

Effective g-factor of quasi-particles is strongly
 anisotropic

Summary

- Chiral d-wave superconductivity is quite likely in URu_2Si_2
- Spin susceptibility is highly anisotropic $\chi_{spin}/c \gg \chi_{spin}/a$ in URu_2Si_2

質疑応答

Q：構造学的に對して對稱性を保つが時間反轉に對して非對稱か？

A：これは時間反轉でも對稱性を保つ。

Q：帶磁率についてだが、秩序狀態（Order state）の話なのか隠れた秩序（Hidden order）の話？

A：今日の話は隠れた秩序の話を無視している。本当は隠れた秩序にも言及しなければならないが、よくわかっていないので秩序狀態に絞って話している。

Q：Hidden order のかけらを見ている？

A：本当は隠れた秩序からどうなるかという話をしないとイケない。隠れた秩序は超伝導狀態形成のクーパー對が生じるところには強く關係しない。

Q：クーパー對が起きた狀態で spin susceptibility が下がるという性質がある？

A：クーパー對ができるとスピン帶磁率が下がる。Normal state から生じる現象のように見えるが本当は隠れた秩序は既に起きている。本当はそのような議論をしないとイケないが、隠れた秩序がまだ解決していない。

Q：磁化率の減少分は全体（バルク）の磁化からすると、どの程度か？

A：Tou 君が比熱などから見積もることができる。ナイトシフトの減り分は計算から得られる減少分と一致している。全体の磁化率に關して軌道の寄与などは調べれば出るがすぐには出せない。その一貫性があるのは確か。そこに Hidden order の欠片を見ているかもしれない。Hidden order でもナイトシフトが減る。磁化率も減る。スピンなのかはよくわからない。磁化率が Hidden order で減ったあとは直線にな

る。そこと超伝導は関係があるが今はすぐに出せない。

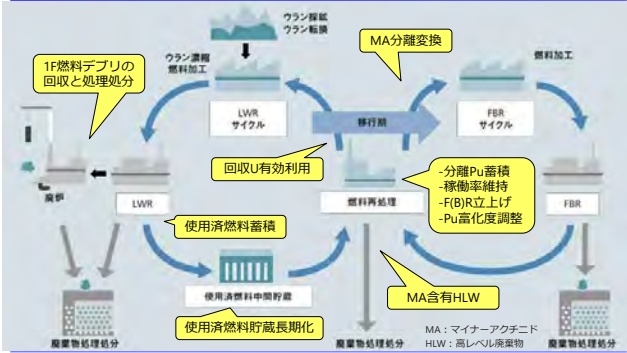
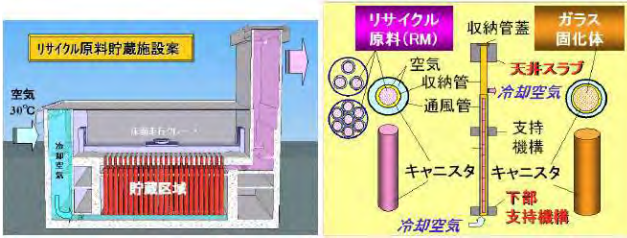
Q：カイラルは結局何に効いている？

A：身も蓋もないことを言うところの対称性だとりうる超伝導の対称性が決まっている。
実際に比熱で個々にギャップがない部分を探すと Line(H)+point が一致する。実際に実験でも一致する。このようなカイラルは珍しく面白い系と言える。

2.7 セッションG

2.7.1 深澤 哲生 (NFD)

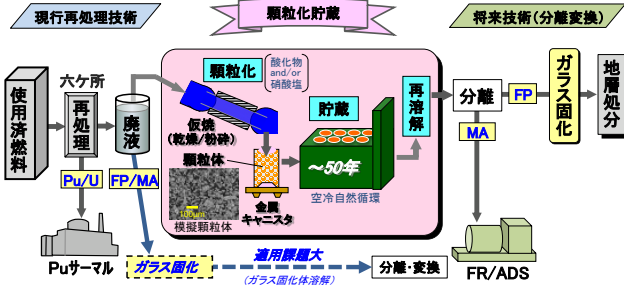
「先進的燃料サイクル技術の開発」

 先進的燃料サイクル技術の開発 日本核燃料開発株式会社 深澤 哲生 2023年度 京都大学複合原子力科学研究所 「アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門研究会」 2024年3月7日 日本核燃料開発株式会社 1	 日本核燃料開発 (NFD) の位置  日本核燃料開発株式会社 2
 目 次 1. 原子力を取り巻く状況と課題 2. 柔軟な燃料サイクル構想 (FFCI) 3. 柔軟な廃棄物管理法 (FWM) 4. FLUOREX法再処理技術 5. 燃料デブリのフッ化処理技術 6. まとめ 日本核燃料開発株式会社 3	 1. 原子力を取り巻く状況と課題  日本核燃料開発株式会社 4
 2. 柔軟な燃料サイクル構想 (FFCI)  日本核燃料開発株式会社 5	 2. リサイクル原料の一時貯蔵  模擬リサイクル原料 (RM、酸化物) の熱伝導度を測定し、熱解析を実施。 RM温度、空気温度が制限値 (1000℃、65℃) 以下となることを確認。 また、高速炉の再臨界評価手法で、臨界安全性を確保できることを明確化。 日本核燃料開発株式会社 6

3. 柔軟な廃棄物管理法 (FWM)

NFD
Power the Future

現行再処理廃液を顆粒化貯蔵して将来確立される分離変換技術を適用



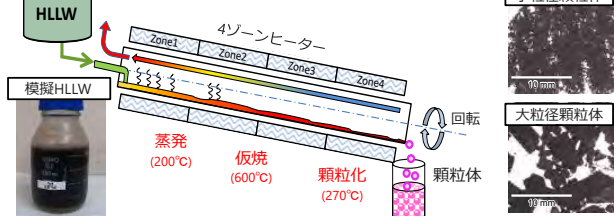
日本核燃料開発株式会社

7

3. 再処理高レベル廃液の顆粒化

NFD
Power the Future

フランスで実績のあるロータリーキルンを適用
(仏AVM/AVHの2段階ガラス固化法の1段階)

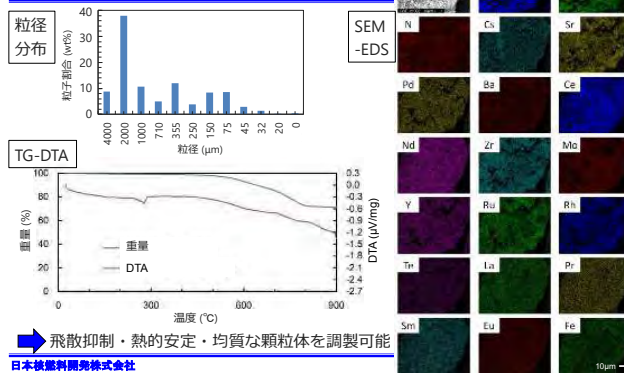


元素	Na	Fe	Sr	Y	Zr	Mn	Ru	Rh	Pd
濃度 (mol/L)	0.583	0.067	0.013	0.01	0.055	0.051	0.039	0.007	0.023
元素	Ta	Cs	Ba	La	Ce	Nd	Sm	Eu	
濃度 (mol/L)	0.007	0.035	0.017	0.021	0.053	0.066	0.012	0.002	

日本核燃料開発株式会社

8

3. 顆粒化試験結果



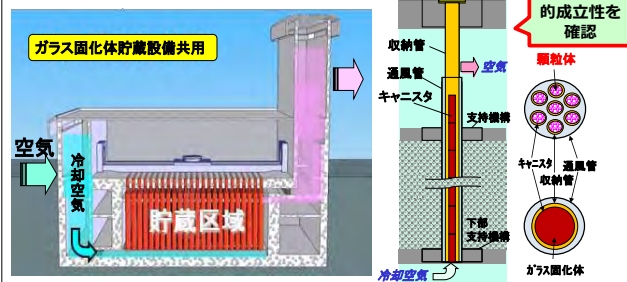
飛散抑制・熱的安定・均質な顆粒体を調製可能
日本核燃料開発株式会社

3. 顆粒体の一時貯蔵

NFD
Power the Future

ガラス固化体と共用貯蔵⇒自然対流による冷却⇒高い信頼性

●貯蔵設備全体図

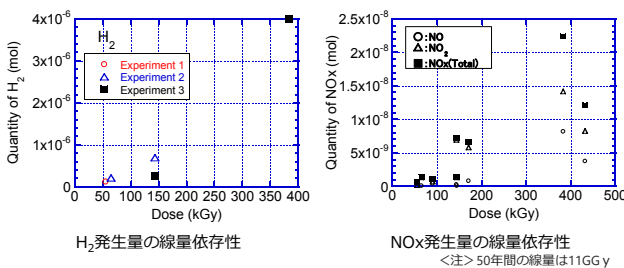


日本核燃料開発株式会社

10

3. γ線照射によるガス発生量

NFD
Power the Future



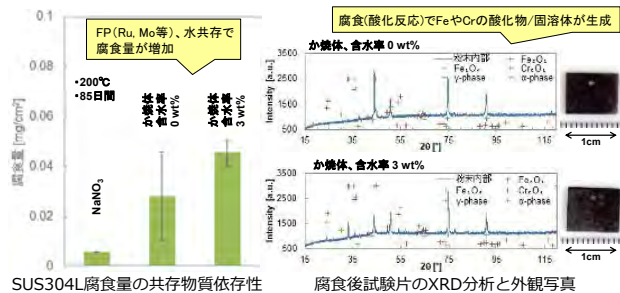
放射線分解によるH₂の発生量はNO_xの発生量より2桁以上多い
含水率0.3%の最大H₂発生量はキャニスタ内圧15気圧に相当
* 模擬顆粒体による試験結果

日本核燃料開発株式会社

11

3. 腐食試験結果

NFD
Power the Future



50年間の腐食減肉量は約53μm

日本核燃料開発株式会社

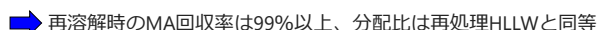
12

NFD
Power the Future



13

NFD
Power the Future



日本植樹料關稅株式會社

14

NFD
Power the Future



15

NFD
Power the Future



16

NFD
Power the Future

日本燃料開発株式会社

17



18

4. 試験結果例

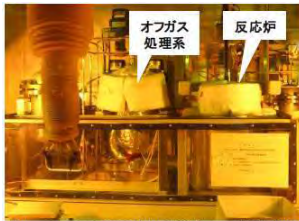


図1 ホットセル内の使用済燃料フッ化試験装置

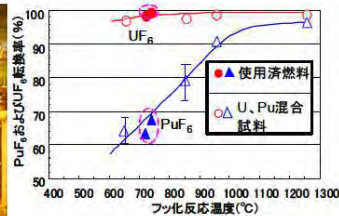


図2 UとPuの気体フッ化物への転換率

➡ FLUOREX法は、U及びPuをFPやMAから揮発分離でき、先進的な使用済燃料再処理方法としての成立性を基礎的に確認した。

日本原子力学会「2008年春の年会」予稿 D30

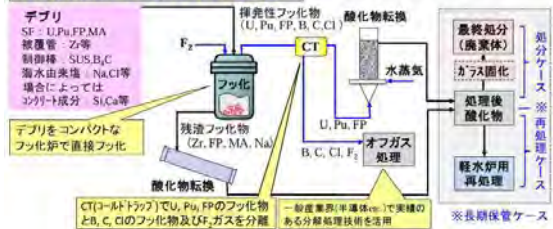
日本核燃料開発株式会社

19

5. 燃料デブリフッ化技術



本法の特長
・元素を選ばずフッ化可能(デブリを分解処理可能)
・デブリの各種処理法に柔軟に対応可
(直接処分、廃棄体化、再処理)
・再処理 - 軽水炉用再処理施設で処理
・廃棄体化 - 酸化物転換後、直接ガラス固化
・デブリ処理施設がコンパクトで低コストで実現可能



日本核燃料開発株式会社

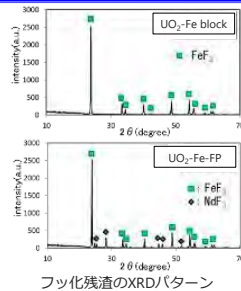
20

5. 試験結果例



模擬デブリ	フッ化残渣	U揮発率 (%)
UO ₂ -Fe	FeF ₃	99.8
UO ₂ -SUS	FeF ₃	99.9
U ₃ O ₈ -Fe ₂ O ₃	FeF ₃	99.9
UO ₂ -ZrO ₂	ZrF ₄	99.3
UO ₂ -ZrO ₂ -Fe	ZrF ₄ +FeF ₃	99.6
UO ₂ -Fe-Na	FeF ₃	99.9
UO ₂ -Fe-B ₄ C	FeF ₃	99.7
UO ₂ -Fe-FP	FeF ₃ +NdF ₃	99.7
UO ₂ -Fe-Al ₂ O ₃	AlF ₃ +FeF ₃ +Al ₂ O ₃	99.8
UO ₂ -Fe block	FeF ₃	99.7

模擬燃料デブリからのウランの揮発率



フッ化残渣のXRDパターン

➡ フッ化法は、模擬デブリ及びチェルノビル実デブリからUやPuを分離でき、合理的な燃料デブリ処理方法として提供できる見通しを得た。

http://www.aesj.or.jp/~recycle/semi13_ps3-4.pdf

日本核燃料開発株式会社

21

6. まとめ



- 我が国の燃料サイクルには、将来の不確定性を考慮した柔軟な対応及び技術開発が求められる。
- 軽水炉から高速炉への移行期に、再処理施設の稼働率を低下させずにプルトニウムバランス調整ができる柔軟な燃料サイクル構想(FFCI)を考案し、模擬試験でその成立性を確認した。
- 将来開発されるMA分離変換技術を現行再処理廃液に適用するため、柔軟な廃棄物管理法(FWM)を開発し、模擬物質を用いた基礎試験及び熱伝導解析等により妥当性と有効性を評価した。
- 回収ウランの有効利用と後段プロセスの簡素化を目的に、フッ化物揮発法と溶媒抽出法のハイブリッド再処理技術(FLUOREX法)を開発し、最終的に実使用済燃料によるフッ化試験で実際に使用できる見通しを得た。
- 福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリの処理技術として、フッ化揮発法を適用するため、種々模擬デブリ及びチェルノビル実デブリのフッ化試験を実施し、合理的に処理できることを明らかにした。

本ご紹介した研究開発は、主に文部科学省からの受託事業で実施したもので、全て公開済みです。

日本核燃料開発株式会社

22

質疑応答

Q：フッ化反応の自由エネルギーの熱力学データの表の中に、デブリの取り出し上重要と思われる U-Pu-Fe がないが？

A：二元系は自由エネルギーを計算できるが、三元系以上は計算できないので、文科省の公募でフッ素 (F_2) を用いた基礎的な揮発試験を実施して実証した。その結果、分離ができることを確認した。MOX に関しては過去に行った実験データがあり、U や Pu を核分裂生成物から分離できることを確認している。

C：今後、三元系の状態図を作っていくような時に U-Pu-O の状態図はあるが Zr や Fe はないので今後、重要になってくるので作成を頑張っていたきたい。

A：状態図の作成については私の能力を超えており難しい。JAEA や大学が共同研究機関であり、状態図を作成してくれる可能性がある。ただし、この公募期間では手を付けられなかった。

2.7.2 島田 隆（京大複合研）

「アクチノイドマネジメントを備えた核燃料サイクルの研究」

(24/3/7アクチノイド研究会)

令和5年度 原子力システム研究開発事業 基盤チーム型 FS探択案件

「アクチノイドマネジメントを備えた燃料サイクルの研究 ～ 持続的な原子力利用に向けて ～」 の概要紹介

2024年3月7日

京都大学 複合原子力科学研究所 山村研
島田 隆



京都大学
東京工業大学

京都大学 複合原子力科学研究所
東京工業大学 科学技術創成研究院

山村 朝雄
中瀬 正彦

日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター

伴 康俊



三菱重工 三菱重工株式会社 原子力セグメント 原燃サイクル技術部

志方 正範

1. 研究概要：提案の背景、目的（軽水炉サイクルにおける課題と解決）

1. 持続可能性に係る軽水炉サイクルの課題

- ① 高次化Puの発生により再処理してもプルサーマルが継続できなくなる
- ② 使用済プルサーマル燃料のMA量が増加し、処分負担（面積）が増大する

2. 課題解決には高速炉の導入が有効である。

しかし、高速炉は開発中であり2045実証炉運開、2060年以後に実用炉が導入されたとしても充分な核変換能力をもつのは22世紀以降となる。

3. 充分な核変換能力を持つまでは再処理に伴い発生するMAは全て地層処分される

⇒ MAをガラス固化体から分離、**暫定保管**することで
核変換能力の有無に関わらず地層処分の負担をすることができると



「アクチノイドマネジメント(ACM)を備えた燃料サイクルの研究」を提案

1. 研究概要

1. 「アクチノイドマネジメント(ACM)を備えた燃料サイクルの研究」

- ① ACMを備えた燃料サイクルの全体像の提示と評価（京都大、東工大、三菱重工）

② 要素技術開発

- A) Np移行制御型U-Pu回収技術（改良コプロ法：JAEA）
- B) MA分離技術（簡素化SELECT法：JAEA、低気化熱希釈法：東工大）
- C) 暫定保管体製作技術（京都大、三菱重工）
- D) 暫定保管技術（三菱重工）
- E) 高効率MA核変換技術（三菱重工）

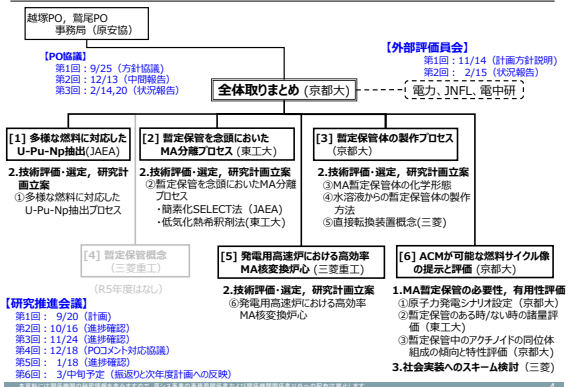
2. 「FS探択」

令和5年度は以下のFS検討を行い、次年度以降の継続可否を判断

- ① 現実的な原子力発電シナリオを描き、暫定保管の必要性、有用性を明らかにする。
暫定保管にともなうアクチノイドの同位体組成の傾向、特性を明らかにする。
- ② 要素技術について既存技術を含めた評価を行い、MA分離、暫定保管の工法や物質形について最も期待できる方法を選定し、次年度以降の実験計画を提案する。
⇒ 継続審査(2/28)

本日は、提案の概要紹介と①の「暫定保管」の有用性を中心に報告

1. 研究概要：R5年度FS検討 実施体制・分担、研究活動実績

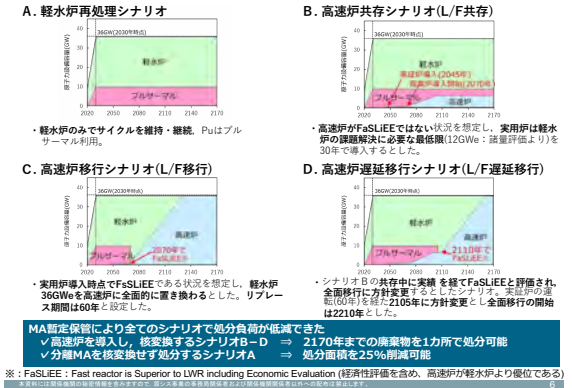


2. 原子力発電シナリオと暫定保管の必要性、有用性 (1) 原子力発電シナリオの設定

- 現実的な原子力発電シナリオ：基本は軽水炉サイクル【シナリオA】
- 軽水炉サイクルには持続可能性の点で課題（高次化Pu、プルサーマル燃料のMA大量発生）
 - ① 高速炉は、本課題に対する解決能力を持つ
✓ 高速炉は炉特性の面でMOX燃焼に伴う高次化Pu発生やMA大量発生など持続性に関する課題は持たず、これらを核分裂や核変換によって減らすことができる。その面では軽水炉より優位にある。
 - ② 高速炉は、課題も持つ（開発途上、経済性未実証）
✓ 高速炉は冷却材へのNa利用に伴う構造面での複雑性を擁しており、経済性においても軽水炉より優位であるとは実証されていない。
- 高速炉が経済性においても軽水炉より優位にある状態を**FaSLIEE**と称して、その実現状況によるシナリオ分岐を想定した【シナリオB～D】
Fast reactor is Superior to LWR including Economic Evaluation
 - ① 【シナリオB】 FaSLIEEでない ⇒ 軽水炉の課題解決に必要な最低限の高速炉のみを導入
 - ② 【シナリオC】 FaSLIEEの時 ⇒ 軽水炉から高速炉に置き換わる
 - ③ 【シナリオD】 当初は違うが後にFaSLIEE状態 ⇒ 最初共存、後に高速炉に置き換わる
- どのシナリオが正しいか、確からず、を追求するのではなく、どのシナリオでもMA暫定保管が有用であることを示す
- 発電容量や高速炉の導入年代の設定：現実の数値や議論の状況がある程度反映
⇒ 大学主体の研究であることを鑑み、検討結果からなるべく普遍化した法則が導けるようある程度単純化したモデル、数値を採用する。

2. MA暫定保管の必要性、有用性について

(2) 設定した原子力発電シナリオと処分面積評価



 京都大学

✓使用済燃料について再処理までの冷却と

✓使用済燃料について再処理までの冷却と暫定保管中におけるAC同位体組成を評価

1) 評価対象燃料

種類	燃費値 64.4L	平均燃費(市況) (L/100km)						
		U	P	N	A	C	総合	
1. PWR (低燃費従)	49.0	-	21.9	-	-	-	21.9	
2. PWR (高燃費従)	60.0	-	17.9	-	-	-	17.9	
3. PWR/フーサール (低燃費従)	42.0	-	22.7	2.75	0.01	0.06	22.55	
4. BWR 全MAX大開	45.0	-	21.8	1.49	0.02	0.04	23.42	
5. FBR FS/FaCT検査(高燃費従)	54.7	1.2	14.5	1.25	0.01	0.02	15.99	
6. FBR FS/FaCT検査(低燃費従)	54.2	1.03	19.9	2.62	0.35	2.22	0.02	24.44

・FBR 原シスFS検討炉心は、今回高効率MA核変換の検討で試算対象の炉心。軸非均質炉心の内部ブラと下部軸ブラを中心に暫定保管後のMAを20~30%減量したもの

2) MA量 (t/GWe年)

種類	測定		測定→測定済み		測定→測定済み		測定→測定済み	
	→	→	→	→	→	→	→	→
1. PWR (低感度)	0	26	35	33	47	46	37	56
2. PWR (高感度)	0	28	36	34	48	45	55	54
3. PWR プルサーマル (低感度)	73	147	263	185	293	280	267	359
4. BWR 全MAX関	60	109	137	119	182	170	219	212
5. PWR FS PaC 検知 (高感度)	154	119	125	110	136	125	144	138

本資料には関係機関の秘密情報を含みますので、原シス事業の事務局関係者および関係機関関係者以外への配布は禁止します。

7

 京都大学

- 発電用高速炉によるMA核変換能力： 約125kg/GWe年*
(FaCTで高内部転換型炉心として想定されていた均質炉MA5%装荷)

(*) 分離変換技術総論, p193, 「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会, 2016年9月
S. Ohki, "Actinide Management with Commercial Fast Reactors," Proc. 11th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2015), March 20-23, 2015, Athens, Greece, AIP Conf. Proc. 1702, 040008 (2015).

- MA発生量推算例に対応して必要な高速炉容量
- | | | |
|-------------------------|-----------|----------|
| ✓六ヶ所(U燃料: 36.6GWe相当) | : 13.7GWe | (全体の27%) |
| ✓二再(U+P-MOX: 43.1GWe相当) | : 26GWe | (全体の38%) |

⇒FaSIIIEが実証されていない場合、
軽水炉の持続性に係る課題解決の目的で高速炉を導入するとしても、
全発電量の27~38%を高速炉とするは現実的ではない。

⇒相場の電量は、高速炉の全発電量に占める割合は、10%程度が上限と考える。
(稼働能力を、3~4倍、400kq/GWe年程度以上への引き上げが必要)

本資料には関係機関の秘密情報を含みますので、図シス事業の事務局関係者および関係機関関係者以外への配布は禁止します。

8

 京都大学

✓使用済燃料の冷却，暫定保管中のMA発熱量の評価

✓使用済燃料の冷却，暫定保管中のMA発熱量の評価

3) MA発熱量 (kW/GWe年)

種類	歩行時		歩行時+静止時		歩行時+静止時		歩行時+静止時	
	歩	止	歩	止	歩	止	歩	止
1. PWR (低燃費度)	0	66	5	65	5	73	5	74
2. PWR (高燃費度)	0	76	7	2	6	3	6	4
3. PWR/フルサマード(低燃費度)	7	1,034	73	21	65	29	57	33
4. BWR 全MOX大綱	5	660	66	15	64	18	41	21
5. FBR FS/FACT検討(高燃費度)	45	333	51	11	39	11	27	11
6. 臨入 直ぐPS試験(高燃費度)	235	7,711	252	203	268	202	244	195

- 炉取出し後の発熱主体は239Npと242Cmであり急激に減少。
 暫定保管により243Cmと244Cmが中心に発熱量は減少。
 冷却期間が長いと241Amに起因し、暫定保管後の発熱量が増加。

4) MAの比崩壊熱 (W/kgMA)

種類	単位	平均値	標準偏差	15	75	90		
1.PWR(低燃度)	—	2.587	133	48	106	61	99	64
2.PWR(高燃度)	—	2.671	183	53	133	62	102	65
3.PWRプリアーナル(低燃度)	95	0.703	358	114	223	103	156	94
4.BWR全MOX大間	85	6.064	480	124	294	107	189	94
5.FBR FS/FCT検討(高燃度)	95	2.293	406	100	284	89	187	100
6.FBR 真ん中FS検討	93	2.122	123	66	111	85	100	67

- ・暫定保管をしたMAはAm存在比が大きいため、再処理で分離直後のMAより比熱線率が小さい。

本資料には関係機関の秘密情報を含みますので、原シス事業の事務局関係者および関係機関関係者以外への配布は禁止します。

9

【ACMサイクルの全体方向性】・・・各要素技術を反映したサイクル像を諸量計算により評価

1. 処分前に移行するMAを減らす
 - 核変換の実用化を待たず、MA分離は早期に回収し、暫定保管する
2. 核変換の対象となるMAを減らす
 - 早期に再処理する。分離したMAは暫定保管してから核変換する
3. 高速炉の核変換能力を引き上げる
 - ① 核変換のための付加コストを抑制のため、小型専焼炉ではなく、中～大型の商業炉で行う
 - ② 従来FACTで想定されていた高内部転換型炉の3～4倍に引き上げる
(400kg/GWe年程度以上、小型専焼炉のみ)

【各要素技術の開発】

1. Np回収制御型U-Pu回収技術（改良プロセス：JAEA）
・利用先に応じたNp優先先行が制御可能なプロセス開発（高速炉：Pu側、プルサーマル：U側）
2. MA分離技術（酸素化SELECT法：JAEA、低酸化熱希釈法：東工大）
・廃液量の低減を目的としたプロセス開発
3. 暫定保管体製作技術（京大、三菱重工）
・廃液量の低減、保管物量削減を目的としたプロセス開発
4. 暫定保管技術（三菱重工）
・保管コスト低減を目的とした設備概念構築
5. 高効率MA核変換技術（三菱重工）
・炉内保管されたMAのブリックレットの大量装荷によるMA確変能力の向上型炉心開発

本資料には関係機関の秘密情報を含みますので、同シス事業の事務関係者および関係機関関係者以外への配布は禁止します。

10

質疑応答

Q：一時保管の面積について 6km 四方程度と提示されたが、コスト計算ではこの程度の土地を得るコストと一時保管のコストを考えた時に土地の方が安いのではないか？

A：ガラス固化体の製造コストが一本で 1 億円で、トータルで 4 万本で 4 兆円になる。最近のデータでそれぞれ 8 千万円、3 兆円になる。処分場の選定は断層がない条件があり一箇所探すのにも苦労しているので、複数箇所を探すのは苦労する。六ヶ所で土地が確保できれば 200 年後の方式にも寄与する。

Q：分離すると処分場面積は 25%減る理由は？

A：ガラス固化体の本数は同じ。MA 分離により MA が含まれず発熱量が減るので集積可能な本数が増えて処分面積が減る。

Q：軽水炉と高速炉は燃料製造の価格まで含んでコストを計算するが処理コストまで含んで計算しているか？

A：GX 対応で高速炉の中の金属と酸化物の比較をするときは再処理コストを入れている。

Q：どんな時でも中間貯蔵をする方が経済的に得か？

A：軽水炉や高速炉の利用についてはさまざまなシナリオがあるが、どのように使用する戦略でも中間貯蔵をする方がコストが安くなる。

Q：オーバーパックに複数のガラス固化体を入れると地層から出てくるシナリオなどが変わるのでは？

A：安全シナリオでは人工バリアが 1000 年程度保つ、その後の移行については人工バリアとは別で制御されているので変わらない。

2.7.3 矢板 毅 (JAEA 物質研)

「マイナーアクチノイドに選択的イオン認識をする配位子の創製」



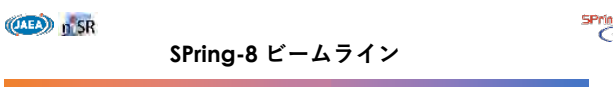
Development of promising ligands that shows selective ion recognition for minor actinides.

T. Yaita^{1,2}, T. Kobayashi^{1,2}, T. Asano², A. Mori²

1. Materials Sciences Research Center
Japan Atomic Energy Agency
2. Department of Chemical Engineering, Kobe University



1



SPring-8 ビームライン

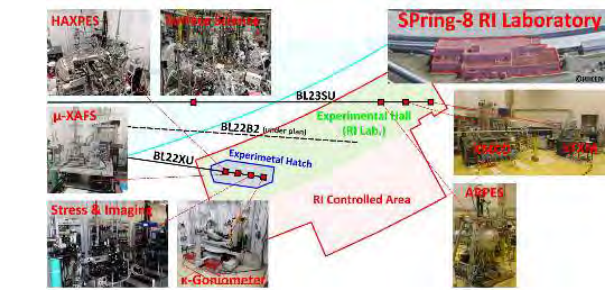
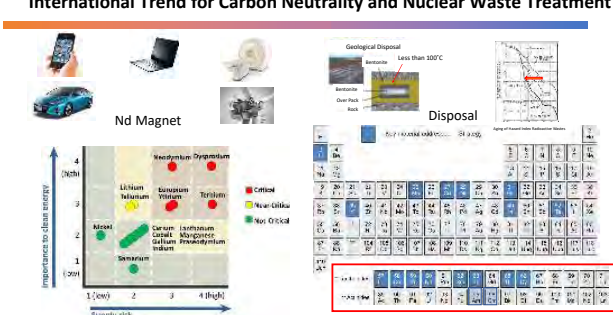


Fig. 1 The schematic figure of the RI laboratory, BL22XU, and BL23SU.

2



Backgrounds
International Trend for Carbon Neutrality and Nuclear Waste Treatment



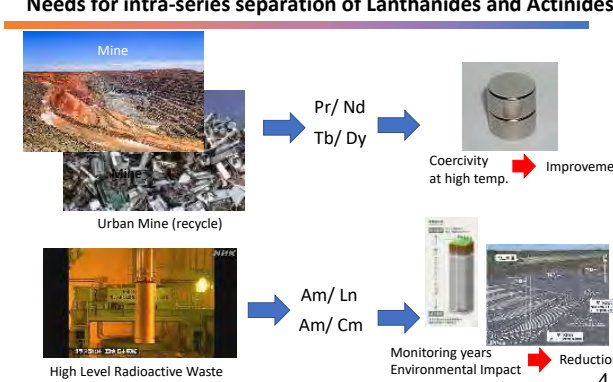
Refer from ES-2, Medium-Term (2015–2025) Criticality Matrix in DOE Critical Metal Strategy (2011).

Similar Chemical Properties

3



Backgrounds
Needs for intra-series separation of Lanthanides and Actinides



4



Purpose of this study

In this presentation, we focus on the separation of these elements, especially Nd, Am and introduce the development of new ligands.

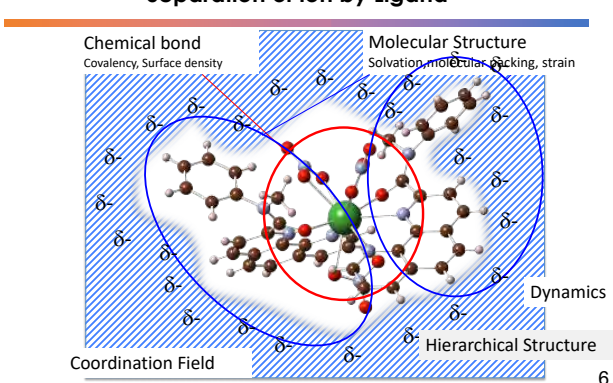
This talk's contents are

1. Fundamental aspects for separation of these elements
2. Design and development of new ligands
3. Conclusion

5



Separation of ion by Ligand



6

Previous works

▷ **Yaita, Kobayashi (Phen-amide)** Kobayashi, T., Yaita, T., Sep. Sci. Technol. **2010**, 45 (16), 2436.
X-ray Structure Analysis Online **2012**, 28.

✓ **Selective separation of An/Ln**

▷ **Yaita, Chai, Ustynyuk (Phen-diamide)** Yaita, Inorg. Chem. **2021**, 60, 13409 and refs therein.
Chai, Inorg. Chem. **2014**, 53, 1712.
Ustynyuk, Chem. Commun. **2015**, 51, 7466.

✓ **Extraction of An and Ln**

▷ **Moyer (Phen-dilactam)** Moyer, Chem. Eur. J. **2019**, 25, 6326. **SF (Pr/Nd) = 6.6**

4 steps
Yield <10%

1,10-phenanthroline-2,9-diamide

7

Molecular Design

▷ **Moyer** Moyer, Chem. Eur. J. **2019**, 25, 6326.

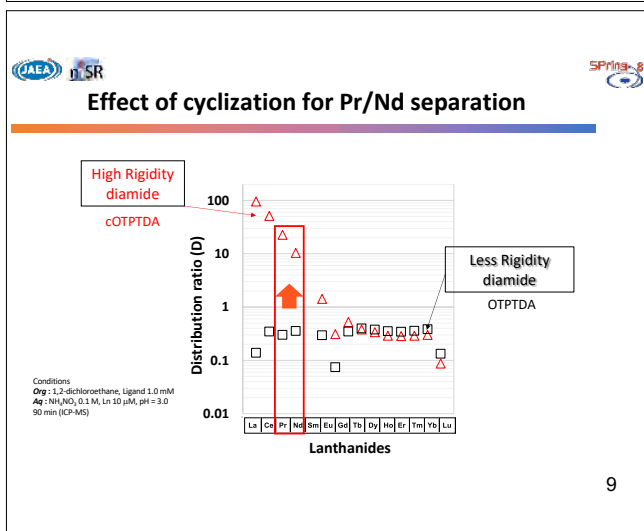
▷ **This Work**
Multiply fused phen-diamide

Upgrade Rigidity

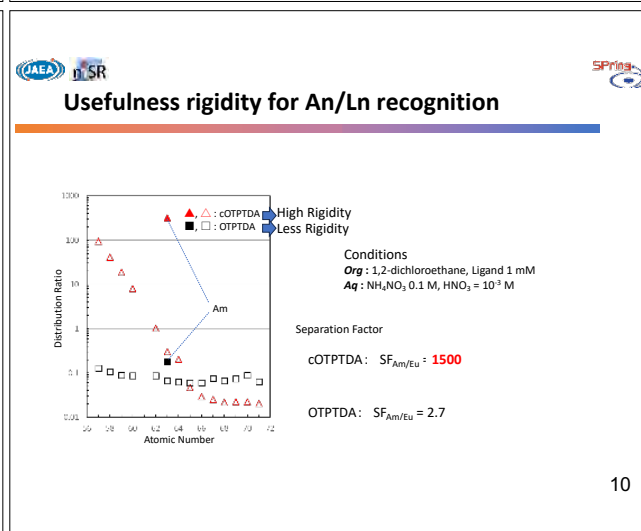
Improved
Extraction performance
Metal-selective extraction

SF (Pr/Nd) = 6.6
Low yield, multi steps

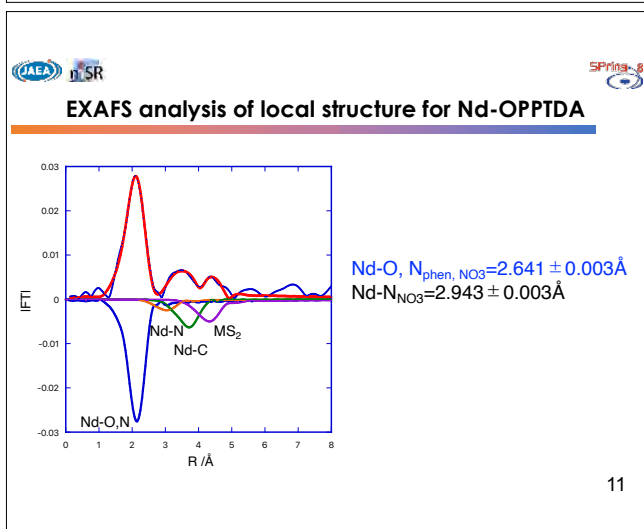
8



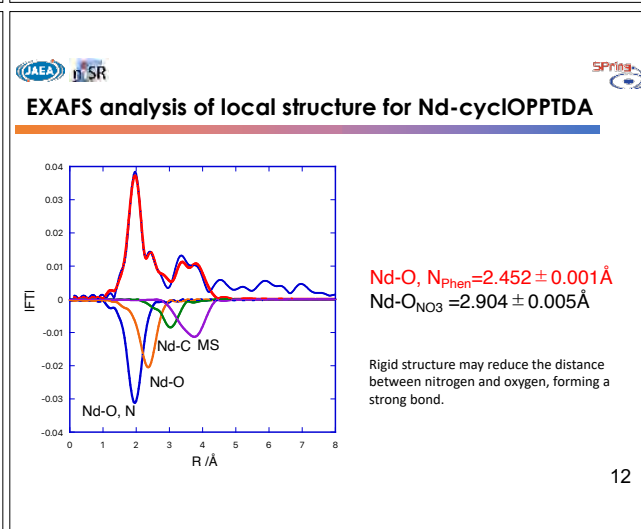
9



10



11



12

Conclusion

- 1) The ion recognition mechanism of phenanthroline derivatives to actinides and lanthanides was elucidated from the viewpoint of molecular structure.
- 2) The rigidity of phenanthroline compounds and size recognition were found to be important factors in the intra-series separation of lanthanides and actinides.
- 3) The use of chemical bonding, especially covalent bonding, for ion recognition between actinides and lanthanides, which are trivalent and almost identical in size, was again confirmed as useful.
- 4) The tetradentate phenanthroline amide compound was found to be ideal for ionic sizes of lanthanides and actinides, which are lighter than Nd, due to the increased rigidity caused by the cyclization of the amide side.
- 5) The synergistic effect of these structural features has resulted in extreme high Am/Eu separation factors in excess of 1000.

13

質疑応答

Q：直線の状態になった時にエネルギー準位が縮退しているが、曲げたことによってエネルギー準位が分かれて好ましい状態になったという理解か。

A：そうだと思う。

Q：配位子側のような外場的な力で Cm に働きかければさらに分裂する？

A：XAFS では窒素と MA の化学結合は見られなかったが、この Cm 錯体では収縮して共有結合が強いことを示す。

Q：今回、Am と Cm で検討されているが他の組み合わせは？

A：Am-Eu や Cm など。

Q：構造を変えることで選択性が出てくる？

A：希土類だと共有結合性はなく構造学的因子で決まる。Am や Cm にジャストフィットし、分離がしやすい構造学的因子である。溶液の中ではダイナミクスでぐるぐる回っている。リジットで回転が生じない配位子を準備したことで早く平衡に達している。

Q：さらに大きな配位子ではどうか？

A：これ以上大きくなると三次元的に配位していくのが難しくなり限界と考える。

Q：硝酸溶液で使えるか？

A：硝酸溶液ではあるが、水素付加が起こらないように高い酸濃度では難しい。

Q：Am との分離に利用できるか？

A：Am と Cm は一緒に抽出されると想定する。イオン半径的には分配比 D は 5 から 6 くらい。

Q：処分屋、再処理屋はどう使うか？

A：CHON 原則に則っているので、焼却できる。地層処分などで問題を回避するため Am を分離して原子力電池にするなどして地上管理などができるようにしたい。

Q：配位原子を硫黄に変えられるか？

A：燃焼しにくい。この配位子は酸化物が得られるのがいいところ。

2.8 第2日目午前・セッションH

2.8.1 芳賀 芳範 (JAEA 先端研)

「アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造の研究」

アクチノイド化合物の異常物性における結晶構造および電子構造の研究

日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター
芳賀芳範

Introduction to actinides

89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

copyright protected image

Los Alamos Science 26 (2000)

アクチノイド：固体物性の観点から

57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71
La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr

磁性

U : 単体金属は非磁性
Nd : 19 Kで磁気秩序(4f)

超伝導・常伝導

U : CDW, 高压相は超伝導
Nd : 金属伝導(5d, 6s)

5f電子状態の理解 (物性、結晶構造、状態図…)

f-electron Heavy Fermion superconductors

	compound	T_c (K)	C_v / T (mJ/K ² mol)	T_m (K)	
1979	CeCu ₂ Si ₂	0.5	~ 1000	complex	1961 Nb ₃ Sn 1986 cuprates
	UPt ₃	0.45, 0.55	500	5 (fluctuating)	
	UBe ₁₃	0.9	1000	< 0.01	
	URu ₂ Si ₂	1.4	80	17.5	
1990	UPd ₂ Al ₃	2	145	14.3	2001 MgB ₂ 2004 diamond 2008 Fe comp.
	UNi ₂ Al ₃	1	300	4	
	CeIn ₃ (p), CePd ₂ Si ₂ (p), CeRh ₂ Si ₂ (p)				
2001	CeCoIn ₅	2.3	500	< 0.01	
	CeRhIn ₅ (p)				
2002	CeIrIn ₅	0.4	500	< 0.01	
	PuCoGa ₅	18.5	70	< 5	
	PuRhGa ₅	8.5	70	< 0.1	
	URhGe	0.15	150	10 (ferro)	
	CePtSi	0.5	300	2.3	
	PrOs ₄ Sb ₁₂	1.5	~ 500	< 0.1	
2006	CeRhSi ₃ (p), CeIrSi ₃ (p), CeCoGe ₃ (p), UIr (p)				
	NpPd ₂ Al ₂	4.9	200	< 0.1	
	UCoGe	0.8	150	3 (ferro)	
2007	UTe ₂	1.6 - 2.1	120	high field phase	

5f電子の理解に向けて

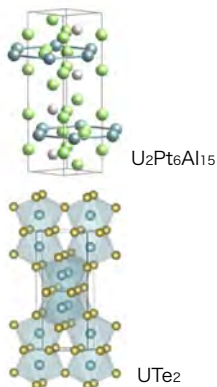
磁性

Uが作るハニカム構造の磁性

超伝導・常伝導

UTe₂ : 異常な超伝導相図

新物質中のウランによる新現象探索



準結晶・近似結晶

準結晶—Quasicrystal

Shechtman 1984 Al-Mn alloy (Mn 14 %)
5回対称の観測：周期構造ではあり得ない

Pd_{58.8}U_{20.6}Si_{20.6} alloy (1985) Poon et al., Univ. Virginia
急冷試料：amorphous — anneal — icosahedral QC (20面体)

基本構造としての多面体クラスター

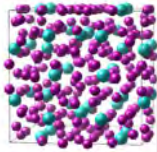
Mackay型 54原子 (Al-Mn alloy)
Bergman型 104原子 (正20面体-正12面体-大きな20面体-サッカーボール型)

Tsai型 (正12面体 - 正20面体 - 菱形30面体 - …)

- Al-Pd-Mn (Tsai et al., 1990), Cd-Yb (Tsai et al., 2000), etc
- 小さな原子 (第1層) と大きな原子 (第2層) と小さな原子 (第3層) が作る最密充填構造であることが数学的に示されている。
- “安定”準結晶
- 近似結晶：Tsai型クラスターが体心正方晶に配列 (Cd-Yb原子配列を決定)
- 構造研究、物性研究が大きく進展。物質の安定相の一つとして認識。

Tsai-type Quasicrystal / Approximant

Cd₆Yb



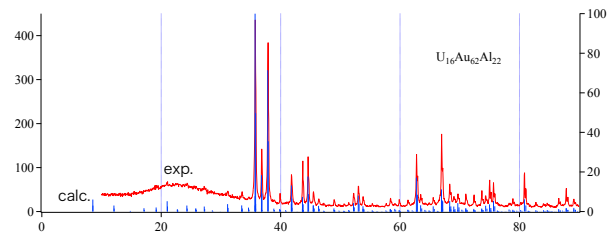
大きな原子 (Yb) は必ず12Rサイトに
入る

copyright protected image

UCd₆は存在しない (UCd₁₁)
NpCd₆, PuCd₆はapproximant

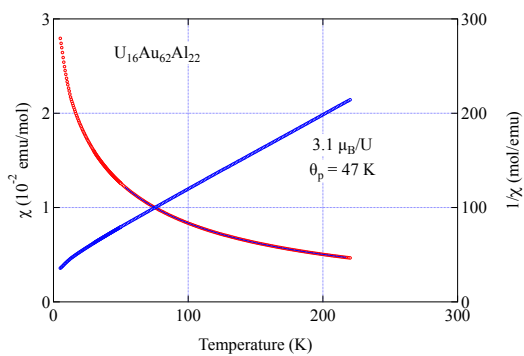
Mori et al., JPSJ 81, 024720 (2012).

Powder XRD



ウラン系初のTsai型近似結晶

Magnetic Susceptibility



Summary

- ・ U-Au-Al系でTsai型近似結晶の作成に成功
- ・ 結晶構造決定
- ・ ウランは12面体の頂点に配置
- ・ その他のサイトはAu/Alが混じっている
- ・ 有効磁気モーメント $\sim 3\mu_B/U$
- ・ $T_M = 4$ K付近に以上 (比熱、磁化、電気抵抗) : AF? エントロピーは小さい
- ・ 磁場とともに低温に移動
- ・ 強い磁気相互作用: 希土類と対照的 (アクチノイドはやっぱりアクチノイド)
- ・ 希土類QC/ACと同様に e/a を見積もると1.92 (spin-glassを予想)
- ・ ただし希土類のトレンドとはずれているようである
- ・ NpCd₆, PuCd₆はいずれもACであり、かなりイオン半径が大きい。magnetic?

質疑応答

Q：初めての thai 型というのは素晴らしいが、元素のサイズ元素の仕込み比率はどのようになっているか？

A：希土類系で調べている人と一緒に行った。希土類での経験を活かしたので一発でうまくいった。分析をすると最適な組成はなっていない。例えば、Al などが少し足りないなど。フィードバックを行いながら近づけている。

Q：仕込み比率の均一な組成の化合物ができているか？部分的に目的組成の化合物ができていることも考えられるが。

A：ほぼ均一である。ごくわずかに粒界に僅かに不純物の析出物がある。そのようなところは Al が抜けている。全体的に QC ができている。

Q：モーメントが極大的に大きいのは、f 電子が局在していて電子比熱が大きいということなのか？モーメントとが大きいってことは局在的にすごく大きい感じがするんだけどもその時に比熱の大きさがどれくらい、大きいということは、熱電子が顔を出してて完全に極大じゃなくて、伝導に寄与しながらということなのか、極大になったということなのか。

A：現時点では完璧ではないが電子比熱に相当するものは 100 mJ 程度のもので f の寄与は伝導電子側にもあると考えられる。

Q：U の価数は？

A：わからないが出発点は 4 価で良さそうだが詳細にはわからない。

- f-f モーメントだが $3 \mu_B$ はウランでよく見られる磁気モーメントである。

Q：プルトニウムの話で価数転移が起こる系では周りの影響を強く受ける。この系も異方性が強いので固体の中でもそのような現象が起こる。Puでもそのような現象が起こるのでは？

A：実験が難しいがぜひやりたい。

2.8.2 川崎 愛理（群馬大）

「重元素分子の QTAIM 解析における相対論効果の検証」

重元素分子のQTAIM解析に おける相対論効果の検証

群馬大学大学院理工学府 電子情報部門

川崎 愛理

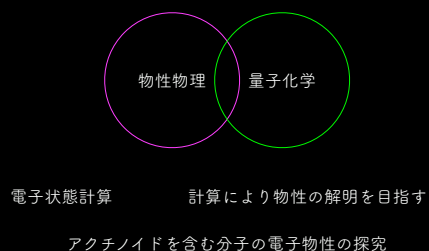
未公開結果などを含むページは
飛ばしてあります

Outline

1. 背景
 - ・ QTAIM解析
 - ・ 相対論効果
2. Non-nuclear attractor (NNA)
3. 結果
4. 今後の展望

1. 背景

Introduction



QTAIM解析

原子の特性や化学反応における分子構造変化の精密な予測を行うために…

Quantum Theory of Atoms In Molecules (QTAIM)

電子密度を用いる解析手法

by Richard Bader, 1970s~

計算機の発展などにより、実用的な解析手法として最近注目されている。

QTAIM解析

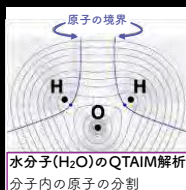
5

QTAIMにおいて、原子や分子中の化学結合は電子密度 ρ を使って定義される。

原子の境界

Zero flux surface $\nabla\rho(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{n} = 0$

$\mathbf{n}$: normal vector to the atomic surface



Critical Points (CP)

6

QTAIMでは、電子密度の勾配がゼロとなるCritical Points (CP)が重要となる。

$$\nabla\rho = 0$$

CPは4つに分類できる。

NCP (nuclear CP) : maxima in the electron density

BCP (bond CP) : saddle points between nuclei

RCP (ring CP) : saddle points inside a ring of nuclei

CCP (cage CP) : minima in the electron density inside a cage

CPにおける解析を行うことで、構造変化予測などが可能となる。

Stress tensor

7

CP上でのstress tensorを解析することで、

結合がどの方向に力を受け移動していくかを予測できる。

$$\sigma(\mathbf{r}) = -\frac{1}{4} \left[\left(\frac{\partial^2}{\partial r_i \partial r_j} + \frac{\partial^2}{\partial r_j \partial r_i} - \frac{\partial^2}{\partial r_i \partial r_i} - \frac{\partial^2}{\partial r_j \partial r_j} \right) \gamma(\mathbf{r}, \mathbf{r}) \right]_{\mathbf{r}=\mathbf{r}}$$

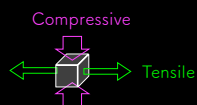
γ : first-order deduced density matrix

by Schrödinger, Pauli, Epstein and Bader

Stress tensorの固有値

正: tensile mode

負: compressive mode



相対論効果

9

原子番号が大きい原子を含む分子では、相対論効果が大きく影響するようになる

内殻の電子が原子核に強く引かれ、電子の速さが光速に近くなる

2. Non-nuclear attractor (NNA)

11

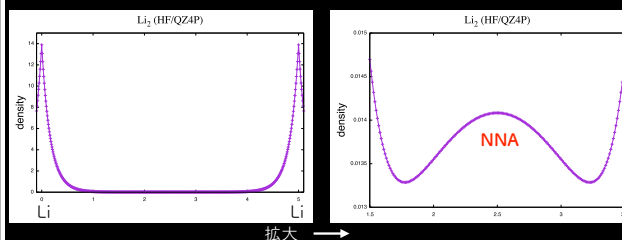
Non-Nuclear Attractor (NNA)

12

Li₂

interatomic distance: 5.0 Bohr

ADF

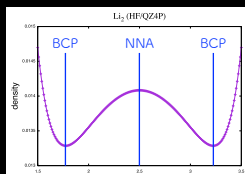


Non-Nuclear Attractor (NNA)

13

原子核が存在しないのに
電子密度の極大

分子内の分割?



分子の解析を行なっていく上で、NNAの有無は重要

アクチノイドに対するQTAIM解析

14

問い

アクチノイドなどの重元素においては、
相対論効果がどれほどQTAIM解析に影響してくるか?

NNAに注目して、重元素分子のQTAIM解析を進める。

NNAが計算で見つかった報告は
Krを含む分子くらいまでしかない。

3. 結果

15

Computational details

16

LiU



Liを含む分子に
NNAが発見される
ことが多い

使用ソフトウェア：ADF

相対論効果：ZORA (scalar)

手法：HF, PBE, B3LYP

基底：QZ4P

ここまでのまとめ

21

アクチノイド物性を解明するための解析法をしてQTAIM解析に注目した。

NNAに注目し、QTAIM解析の相対論効果を検証した。

LiUの解析を行い、NNAの有無が計算条件により異なることが分かった。

QTAIM解析は相対論効果に対して繊細に影響を受ける。

4. 今後の展望

22

QTAIM以外の解析法

23

QTAIMは既存のソフトウェアも充実しており、分子解析に便利な手法であるが、stress tensorの計算などでは高次の微分を含むため、厳密な収束条件や高度な基底関数を用いる必要がある。

電子相関についても考慮した電子状態計算を行う。

QTAIM解析を進めると同時に、QTAIM以外の解析法でも重元素の解析を進め、QTAIM解析の正当性などを評価していく必要。

Ehrenfest解析

24

電子密度ではなく、**Ehrenfest力**を用いた解析手法

Ehrenfest力：分子内の1つの電子が原子核と他の電子から受ける力の平均

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = -N\langle\Psi|\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_1)\nabla_{\mathbf{r}}\left(\sum_{a=1}^{N_{\text{atoms}}}\frac{-Z_a}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}_a|}+\sum_{j=2}^N\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}_j|}\right)|\Psi\rangle$$

Ehrenfest力がzeroとなるLagrange points (**LP**)に注目し解析

外部からの力の影響を評価しやすく、より精密な解析が可能

QTAIM vs Ehrenfest

25

QTAIM

電子密度の勾配がzero：**CP** 重要な点

Ehrenfest

Ehrenfest力がzero：**LP**

Stress tensor

化学反応予測

Ehrenfest Hessian



定義が曖昧であるという欠点

Stress tensorの曖昧性

26

Differential virial theoremによると、
stress tensorの負の発散がEhrenfest力になる

$$\mathbf{F}(\mathbf{r}) = -\nabla \cdot \sigma(\mathbf{r})$$

$$\sigma(\mathbf{r})_{ij}^{\alpha\beta} \equiv -\frac{1}{2}\left[\alpha\left(\frac{\partial^2\gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}')}{\partial r_i^2\partial r_j^2}+\frac{\partial^2\gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}')}{\partial r_j^2\partial r_i^2}\right)-(1-\alpha)\left(\frac{\partial^2\gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}')}{\partial r_i\partial r_j}+\frac{\partial^2\gamma(\mathbf{r},\mathbf{r}')}{\partial r_j\partial r_i}\right)+\delta_{ij}\beta\nabla^2\gamma(\mathbf{r})\right]_{\mathbf{r}=\mathbf{r}'}$$

$\alpha = 1/2, \beta = 0$ のときBaderらのstress tensorとなる。

Stress tensorの曖昧性

27

Differential virial theorem

$$\mathbf{F}^{Ef}(\mathbf{r}) = -\nabla \cdot \sigma(\mathbf{r}) \quad \nabla \cdot \sigma_0(\mathbf{r}) = 0 \text{ となる } \sigma_0(\mathbf{r}) \text{ を加えても成立}$$

$$\text{原子分子のEhrenfest力} \quad \mathbf{F}^{Ef}(\Omega) = \int_{\Omega} \mathbf{F}^{Ef}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad \Omega : \text{volume}$$

$$\mathbf{F}^{Ef}(\Omega) = -\int_{\Omega} \nabla \cdot (\sigma(\mathbf{r}) + \sigma_1(\mathbf{r})) d\mathbf{r} \quad -\int_{\Omega} \nabla \cdot \sigma_1(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = 0$$

$$\mathbf{F}^{Ef}(\mathbf{r}) \neq -\nabla \cdot (\sigma(\mathbf{r}) + \sigma_1(\mathbf{r}))$$

今後の展望

28

LiU以外にもNNAがあるアクチノイド分子を見つけ、計算条件とNNAの有無をさらに検証する。

QTAIM解析だけではなく、Ehrenfest解析を用い、相対論効果を検証する。

相対論効果が重要となるアクチノイドなどの重元素分子に対する最適な解析法を確立し、物性解明を目指す。

質疑応答

Q：NNA（Non-nuclear Attractor）は現象論としてはどのようなものか？

A：原子核が無い位置でも山（電子密度の極大）が見えるという現象。

Q：電子密度の極大は結合的な電子の重なりに対応していますか？

A：イメージ的にはそう取ってもらって良い。

Q：初めのところで、相対論の計算がスカラーと書かれていたがスピン軌道相互作用を含まないという意味か？

A：はい。

Q：相対論効果を取り入れない場合と取り入れる場合を考えると、後者では一般的に原子核周りが収縮する。そうすると周りの離れた電子は遮蔽され、外側の電子が広がる感じになる。そのような理解から、結合が強くなったような感じで出ているか確認したい。相対論効果を入れると結合ができるということは、波動関数が広がって結合しやすい状況になったという理解であっているか？

A：はい。

Q：スピン軌道相互作用を入れなくても、遠く離れたところはスカラーの相対論的效果でも大きく変化はないので、良い結果が出ているのではないか。

A：力の計算は自分も試したことがあり、水素様原子で見積もると相対論効果ってのは Z の4乗に比例するが、ありでは力は Z の5乗に比例する。そのため相対論効果を取り入れた計算をする必要がある。

Q：LiU の計算で、核間距離を変えたものについて実分子の原子間距離を変えた場合に NNA が出てきたりするのか？

A：その通り。平衡原子核間距離よりも、原子間距離を小さい方向や大きい方向に変えると NNA が出てくる場合がある。

Q：実験的確認された例は？

A：例は少ないが実際に観測されたものがある。

2.9 セッションI

2.9.1 佐藤 哲也 (JAEA 先端研)

「JAEAにおける重・超アクチノイド化学研究の現状」



JAEAにおける重・超アクチノイド元素化学研究の現状

佐藤哲也
極限重元素核科学研究グループ
先端基礎研究センター

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用
・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

超重元素の化学

超ウラン元素: $Z > 92$
超アクチノイド元素: $Z > 103$

超重元素の化学的性質
強い相対論効果の影響による周期律からの“ズレ”

超重元素 ($Z > 100$)
- 合成に重イオン核反応
- 短寿命 (秒～分オーダー)
- 低生成率 (1個/分～時間)

“Superheavy elements (SHE)”

→ “単一原子化学”
迅速・高効率

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

原子一個の化学 One Atom-at-a-time Chemistry

“超重元素研究では、一度の化学操作に原子一つしか扱えない”

マクロ量化学 (通常の系) 単一原子化学

Law of Mass Action
質量作用の法則
(化学平衡の法則)
↔ 平衡定数

Chemical equilibrium

目的分子

Phase 1 Phase 2

濃度, $C_1 < C_2$ 存在確率, $P_1 < P_2$

⇌ Equivalent

反復操作

迅速 & 高効率な放射化学分離手法が必要

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

産経新聞 R5.11.11

Copyright protected image

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

JAEA タンデム加速器

JAEA Tandem Acc. Facility

Pelletron Type-20UR (NEC)
Terminal Vol.: 2.5-18 MV
Ion source: 3 Negative IS
1 ECR IS
Beam current: 3 pA (H),
1 pA (heavy ion)

世界最大 (級) の静電加速器

“日本における超重元素化学はここから始まった”

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

原子力機構における超重元素研究

1. 気相化学研究
 - ・105番元素ドブニウム (Db) の気相化学研究
 - ・106番元素シーボーギウム (Sg) 研究に向けたモデル実験
2. 液相化学研究
 - ・フロー型迅速液相化学実験装置の開発
3. 超重元素イオンビーム利用研究
 - ・重アクチノイドのイオン化エネルギー決定
 - ・超重元素イオンビーム発生用ガスジェット結合型EBGPイオン源の開発

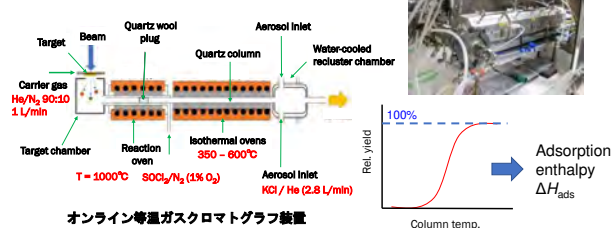
Actinides (f-block) Transactinides (d-block)

102No 103Lr 104Rf 105Db 106Sg

京大核合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子炉照射装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

1. 気相化学研究： Db (Z=105)

$^{248}\text{Cm}(^{49}\text{F}, 5n)^{262}\text{Db}$
 $^{19}\text{F}^{7+}$ @103 MeV, 350 pnA ⇒ 揮発性オキシ塩化物



オンライン等温ガスクロマトグラフ装置

京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

1. 気相化学研究： Db (Z=105)

MOCl_3 (M=Nb, Ta, Db)の揮発性
 本研究

Nb > Ta ≈ Db

↑
 周期表からの予想

Nb > Ta > Db

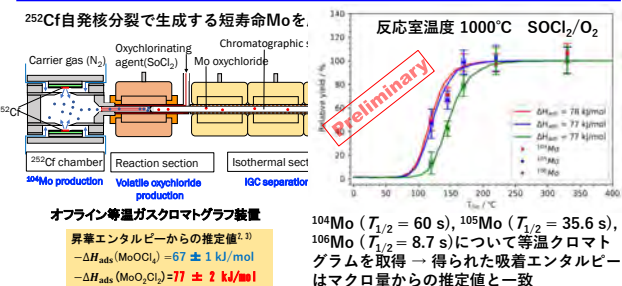
- Dbオキシ塩化物を単一化学種として分離し、同族元素と比較
- Db化合物の揮発性は周期表からの予想よりも高い

相対論効果の影響？

N. M. Chiera, et al. Angew. Chem. 60 (2021) 17871-17874.

京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

1. 気相化学研究： Sg (Z=106)のモデル実験



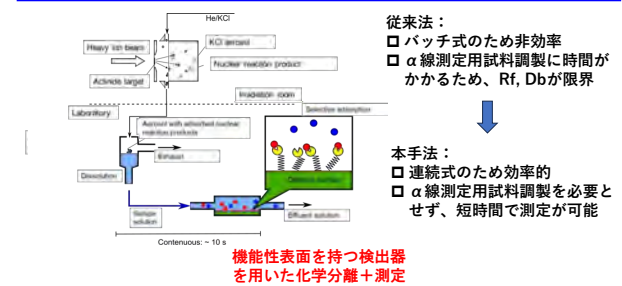
オフライン等温ガスクロマトグラフ装置

昇華エンタルピーからの推定値^{2,3)}
 $-\Delta H_{\text{ads}}(\text{MoOCl}_3) = 67 \pm 1 \text{ kJ/mol}$
 $-\Delta H_{\text{ads}}(\text{MoO}_2\text{Cl}_2) = 77 \pm 2 \text{ kJ/mol}$

^{104}Mo ($T_{1/2} = 60 \text{ s}$), ^{105}Mo ($T_{1/2} = 35.6 \text{ s}$),
 ^{106}Mo ($T_{1/2} = 8.7 \text{ s}$)について等温クロマトグラムを取得 → 得られた吸着エンタルピーはマクロ量からの推定値と一致

京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

2. 液相化学：フロー型連続溶液化学実験装置の開発



従来法：
☐ バッチ式のため非効率
☐ α線測定用試料調製に時間がかかるため、Rf, Dbが限界

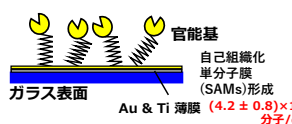
↓
 本手法：
☐ 連続式のため効率的
☐ α線測定用試料調製を必要とせず、短時間で測定が可能

機能性表面を持つ検出器を用いた化学分離+測定

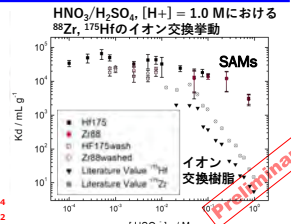
京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

2. 液相化学：機能性表面を備えた検出器開発

機能性アルカンチオール
 $\text{HS}-(\text{CH}_2)_{11}\text{NMe}_3^+\text{Cl}^-$
 $\text{HS}-(\text{CH}_2)_{11}-\text{SO}_3\text{Na}$
 (Prochimia Surfaces, sp. zo.0)

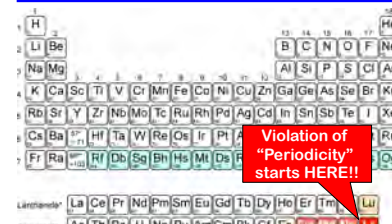


作成した機能性表面がイオン交換能をもつことを確認



京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

Violation of Periodicity in Electronic Configuration



In chemistry,
 - Strong relativistic effects might lead to disorder the "periodicity" of chemical properties of elements.

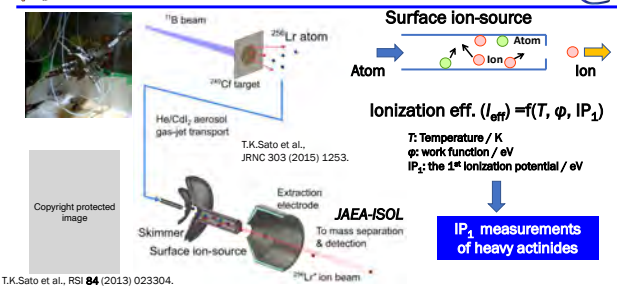
[Rn]5f¹⁴7s²6d (Non Rel.)
 ↓
 [Rn]5f¹⁴7s²7p₁/₂ (Rel. eff)

The first ionization potential (IP₁) would give a direct information on the electronic configuration

× Conventional methods

京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子伊勢射線装置RI製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

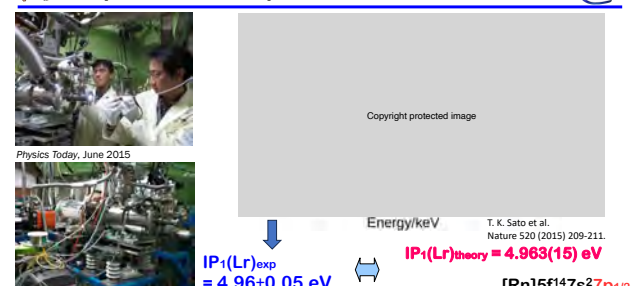
Ionization potential measurements using ISOL



T.K.Sato et al., RSI **84** (2013) 023304.

京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

Experimental set-up & ionization



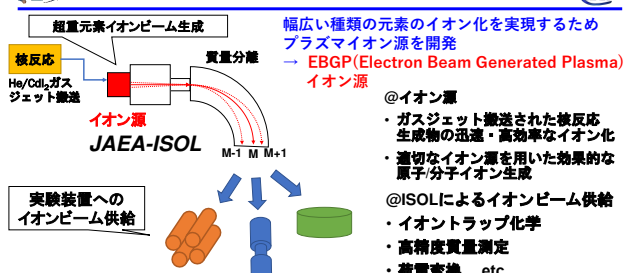
京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

Fm – No IP measurements



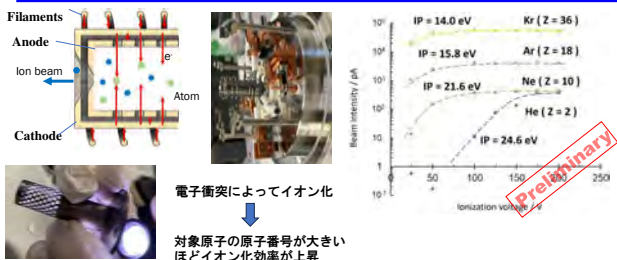
京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

3. 超重量素イオンビーム化学研究



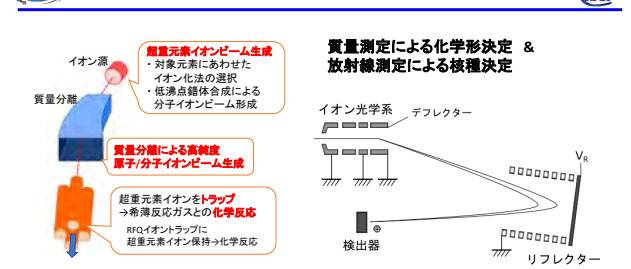
京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

3. 超重量素イオンビーム化学研究: ガスジェット結合型EBGPイオン源開発



京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

イオン分子反应用質量分析装置の開発



京大融合研 2023年度アクチノイドの物性化学とその応用・原子イオン放射線を用いた製造に関する専門研究会(2024/03/07-08)

質疑応答

Q：質問としてはエネルギー準位でd軌道 ($l=2$) に入るのか、p軌道 ($l=1$) に入るのかを相対論的に扱う時に角運動量を取り扱う時にp軌道 ($l=1$) だと相対論効果の影響を強く受け、d軌道 ($l=2$) になると受けなくなる。これが相対論効果の影響だと見てもいいか？

A：そうです。化学における相対論効果はsやp軌道が収縮して安定化し、d、f軌道は外側に広がることで不安定化する。そのバランスによってエネルギー準位が分裂して安定する。そのような理解で正しい。

Q：クーロン力でdとpのレベルが離れている場合、相対論効果を入れるとdが安定優勢になるのか？

A：Lrの原子のエネルギー準位レベル数を書くと非常に接近している。ペアになった方が安定になるペアにならなくても安定でいられるか不安定化するかである。せめぎ合っている状態では一度不安定になり、その後安定に変化する。dとpのレベルの位置が非常に接近していて相対論効果があらわに入ると順番があるのでpが結局優勢になっている。

C：ちょっと面白いのが、いわゆるp軌道である。 $p_{1/2}$ は13族でNhに近い。Lrはf軌道が入ったNhと同じ電子配置になっている。イオン化エネルギーはものすごく低くKとRbの間で第1エネルギーから見ると1族に入る。順番がずれている。

C：遷移金属の定義としてd軌道の電子を使ってイオンになるか分子になる。p軌道の電子配置なので遷移金属に関する定義を変えなければいけない。そのような稀有な時代にいる。第7周期が出現すると言われているが、周期表をどう考えていくか良いきっかけになるのではないかな。

Q：試験問題では「Amは溶液中で3価が安定」が正解である。ところがNoは2価が安定だという。Lrは3価が安定で良いか？

A：キュリウムより軽い元素では全て3価、4価、5価、6価が安定であったり、複数の価数を持つということが核燃料取扱主任者の試験問題で必ず問われる。Noだけ2価が安定であるという事実が重要だ。

2.9.2 志水 陽一（京大医病院）

「京大病院における Radio-theranostics の現状」



2023年度「アクチノイドの物性化学と応用・原子炉照射医療用RI製造に関する専門研究会」

京大病院におけるRadio-theranosticsの現状

京都大学 医学部附属病院
放射線部
志水 陽一

RI治療薬

国内で承認されている薬剤

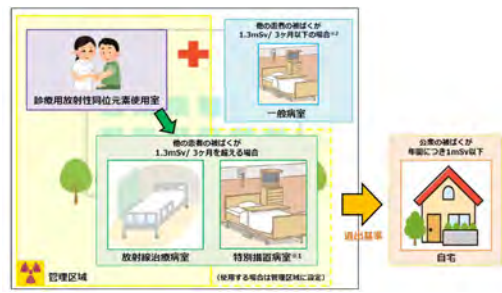
薬剤	核種	半減期	適応疾患	価格
NaI	I-131 (β線)	8日	分化型甲状腺癌 甲状腺機能亢進症	45,360円/カプセル (10~12カプセル/回)
SrCl ₂	Sr-89 (β線)	50.5日	転移性骨腫瘍に対する疼痛緩和	328,911円/回
Y-ibritumomab	Y-90 (β線)	2.7日	再発・難治性悪性リンパ腫	4,443,140円/回
RaCl ₂	Ra-223 (α線)	11.4日	去勢抵抗性前立腺癌	684,930円/回
Lu-DOTATATE	Lu-177 (β線)	6.6日	ソマトスタチン高発現 神経内分泌腫瘍	2,648,153円/回 (4回/治療)
MIBG	I-131 (β線)	8日	難治性褐色細胞腫	1,072,505円/本 (3~4本/回)

本日の内容

Radio-theranostics

- Radioisotope
 - Therapy ⇨ 治療用RI核種標識薬剤を用いて核医学治療
β線: ¹³¹I, ⁹⁰Y, ¹⁷⁷Lu
α線: ²²³Ra, ²¹¹At, ²²⁵Ac
 - Diagnostic ⇨ 診断用RI核種標識薬剤を用いて核医学診断
PET (β⁺線): ¹⁸F, ⁶⁸Ga, ⁶⁴Cu, ⁶⁹Zr
SPECT (γ線): ^{99m}Tc, ¹²³I, ¹¹¹In

RI治療薬を用いた治療



Ref. 厚生労働省 第1回医療放射線の適正管理に関する検討会資料2

RI治療薬を用いた治療

退出現準とは

○ 退出現準とは、放射性医薬品により治療を受けている患者を放射線治療病室等から退治せたとしても、当該患者が第三者へ与える放射線被ばくについて、

一般公衆の線量限度¹⁾ : 1 mSv/年
(病人を訪問する子供を含む)

介護者の線量拘束値²⁾ : 5 mSv/一行為

を上回らないことを担保することができるため、当該患者について特別な管理を必要としない基準である。

○ 退出現準には、第三者へ与える放射線被ばくを考慮して、患者の治療に使用した核種ごとの投与量又は体内残留放射能及び線量当量率を示している。

○ 退出現準を満たした患者は放射線治療病室等から退治することができる。

Ref. 厚生労働省 第1回医療放射線の適正管理に関する検討会資料2

退出現準

- 患者の退治・帰宅における放射線量(投与量又は体内残存放射線量)
 - ⁸⁹Sr: 200 MBq以下
 - ¹³¹I: 1110 MBq以下
 - ⁹⁰Y: 1184 MBq以下
 - ²²³Ra: 12.1 MBq以下
- 患者の退治・帰宅における線量当量率(患者表面から1メートル)
 - ¹³¹I: 30 μSv/h以下
 - ¹⁷⁷Lu: 18 μSv/h以下

一部の薬剤でRI病室での入院が必要

¹³¹I-NaI(高容量): 3泊4日

¹⁷⁷Lu-DOTATATE: 1泊2日

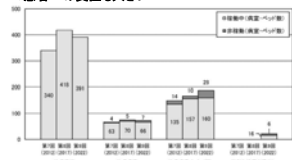
¹³¹I-MIBG: 6泊7日以上

RI治療室

- RI管理区域内に病室を設置
 - 遮へい体(主にベッド)に鉛遮へい体が付属、専用の排気・排水設備の設置が必要
- 病室内(管理区域内)では基本RI室と同様の対応
 - ゴミはRI廃棄物へ、病室内から物を持ち出す際には汚染検査が必須



- 病室の維持費が高額
- 病室内での看護等の対応が難しい(作業者の被ばくの観点から)
 - ⇒ 患者への負担も大きい



Ref: 日本アイソトープ協会医学・薬学部会 全国核医学診療実態調査専門委員会 第9回全国核医学診療実態調査報告書

特別な措置を講じた病室

医療法施行規則第30条の15

病院又は診療所の管理者は、診療用放射線照射装置若しくは診療用放射線照射器具を持続的に体内に挿入して治療を受けている患者又は診療用放射性同位元素若しくは陽電子断層撮影診療用放射性同位元素により治療を受けている患者を放射線治療病室以外の病室に入院させてはならない。

ただし、適切な防護措置及び汚染防止措置を講じた場合にあっては、この限りでない。

一般病室でも、RI治療薬投与患者が入院する時のみ
放射線防護、汚染防止措置などをすることで入院対応が可能に

特別な措置を講じた病室に係る基準、管理・運用
及び行動規範に関するマニュアル

2021年9月

特別な措置を講じた病室

"特別な措置を講じた"病室への対応

- ・ 病室外の患者被ばく実効線量: 1.3 mSv/3月
(RI管理区域の設定基準と同じ)
⇒ 薬剤の体内動態を考慮して被ばく線量計算
することで、適切な遮へい対応が可能
- ・ 室内に汚染拡大防止措置
(床面等にポリ紙を敷くなど)
- ・ トイレが設置された個室
- ・ 尿は蓄尿容器に保管し、定期的にRI室で廃棄
- ・ 投与患者の呼吸等による病室内の空気中の放射性同位元素の濃度が、核種ごとに別表第3第2欄
(空气中濃度限度)の濃度を超えない
⇒ 呼吸への移行量が判っているRI治療薬に限定



京都大学医学部附属病院 RI治療関連施設



中病棟地階RI施設
・ 外来
・ 特別措置病室関係の対応
(薬剤投与など)

北病棟RI病室
・ 入院対応(3⇒5床)

KI-CONNECT病棟
・ 特別措置病室(臨床研究・治験対応)(2床)

RI治療の問題(個人的意見)

- RI病室での入院対応
 - ・ RI病室: 病室の設置・維持費が高額、患者対応が難しい
 - ・ 特別措置病室: 病室内の汚染防止措置、尿対応などで現場に負担
- 出来れば外来で対応
 - ・ α線放出核種を標識したRI治療薬の普及
- RI治療薬の供給体制
 - ・ 薬剤費が高価
 - ・ 基本海外で製造・輸入対応
 - ⇒ 薬剤供給日が限定: 治療を受けられる患者数が限定(病床稼働率が低下)
- RI治療の普及には国内で安定かつ(比較的)安価に製造・供給が重要に
- RI規制が厳しい

核種	最大使用数量 (MBq)	遮へい(μSv/週)	排気(濃度比)	排水(濃度比)
¹²⁵ I	2,200(週5日)	1.73E-3	4.25E-1	2.44E-2
¹⁷⁷ Lu	25,000(週5日)	9.89E-9	2.33E-2	3.94E-3
²¹¹ At	111(週3日)	2.72E-4	2.07E-1	1.25E-85
²²⁵ Ac	111(週3日)	1.95E-6	1.03E-1	1.74E-2

質疑応答

Q：薬価におけるボトルネックについて伺いたい。RI 自体の金額がボトルネックか？製造にお金がかかっているのか？

A：製薬企業がどのように設定しているかわかりませんが、RI で Lu-177 は 1 回分 7.4GBq は海外から直接買うと 260 万円を要する。これに加えて開発費も、RI 原材料が安くなれば安くなっていく。国内で RI を作ればコストが減少する。

Q：RI の生産が国内でできたとして、標識は国内できますか？

A：医療の品質を満たせるかと、製造量が問題になる。Lu-177 では 1 回 7.4GB が国内に毎週 50 本（合計 370GBq）が入ってくるが、その程度の量を国内で対応できるのか。また、次に来る薬は 2 年後に承認されると予想されるが 10 倍以上の需要がある。需要に対応できる量を毎週作れるかが課題になる。

Q：昨日角山先生から前臨床体制の構築があり、At と Ac についても承認を取っていきたいとのお話があった。病院の方では規制が厳しいとの話があった。以前、阪大、東北大の方々と山村も科学的データに基づくガイドラインの作成に携わった経緯がある。そのガイドラインは事業者ごとにガイドラインの作成を行える。病院的にはどうか？

A：ガイドラインを作ることは末端の病院側では非常に難しい。ガイドラインの作成に向けた普及活動などに協力いただけると非常にありがたい。次のステップとして重要。

Q：JAEA 内の雑談程度だが、RI 特区を作れないかという議論が以前あった。自由に使える場所をつくれれば研究を強化できるのではという話。このような機会を含めて議論をすることができればいいのではないか？

A：複合研では BNCT など色々な議論があった。このような場を含めて議論できればいいなと思う。

C：一般区域にある MRI に PET 装置を併設したことがある。病院でも特区を設けて管理区域外で PET 測定ができるようにしたことがある。現実的に可能な話なのではないか。

2.10 セッションJ

2.10.1 野上 雅伸 (近大理工)

「ホスフィンオキシドとウランイオンとの錯形成および海水ウラン回収への展開」

高次融合研 2023年度 アクテノイドの物性化学とその応用
・原子炉照射後使用RI製造に関する専門研究会 Mar.8, 9, 2024

ホスフィンオキシドとウランイオンとの錯形成
および海水ウラン回収への展開

近畿大学理工学部
野上 雅伸

Background to develop compounds with selectivity for U(VI) in acidic HNO_3 media

TBP monoamides

Extractants for tetravalent and hexavalent actinide ions from HNO_3 media in solvent extraction systems

N-cyclohexyl-2-pyrrolidone (NCP)
(Water-soluble)

Precipitant for U(VI) in HNO_3 media

$\text{UO}_2^{2+} + 2\text{NO}_3^- + 2\text{NCP} \rightarrow \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{NCP})_2 \downarrow$

2

Conventional extractants for An(III) and Ln(III) recovery

copyright protected image

PPTPT - a compound with unusual selectivity for U(VI) -
Earlier studies on adsorptivity of silica-supported impregnated adsorbents of PPTPT and HPTEPT to various metal ions

Unusual V-notch curve

Adsorptivity of PPTPT and HPTEPT adsorbents to U(VI) and Nd(III) in HNO_3 solutions

PPTPT HPTEPT

Adsorptivity of PPTPT adsorbent to various metal ions in HNO_3 solutions

M. Nogami, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem 283, 541-546 (2010).

4

PPTPT - a compound with unusual selectivity for U(VI) -
Earlier studies on adsorptivity of silica-supported impregnated adsorbents of PPTPT and HPTEPT to various metal ions

Unusual V-notch curve

Adsorptivity of PPTPT and HPTEPT adsorbents to U(VI) and Nd(III) in HNO_3 solutions

PPTPT

Adsorptivity of PPTPT adsorbent to various metal ions in HNO_3 solutions

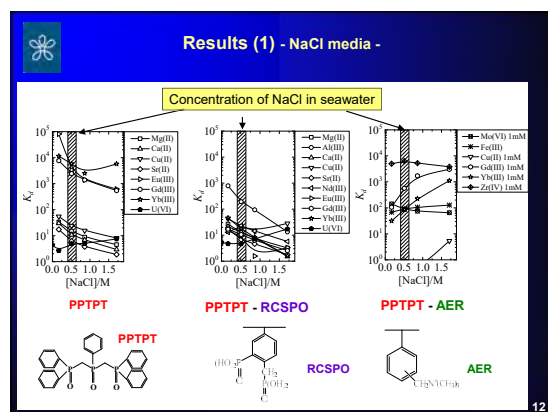
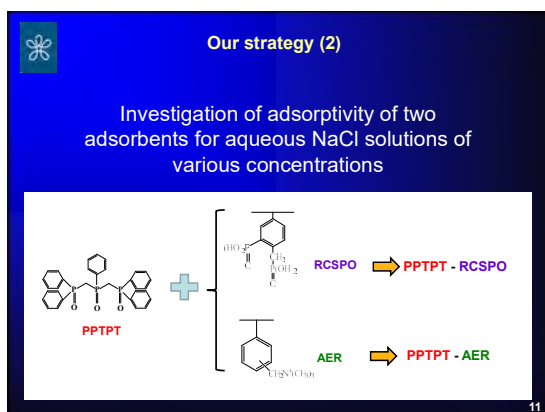
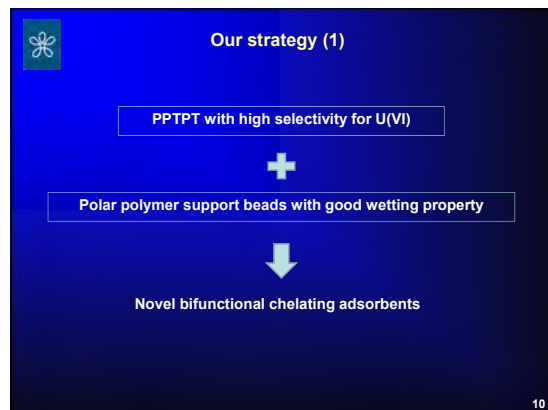
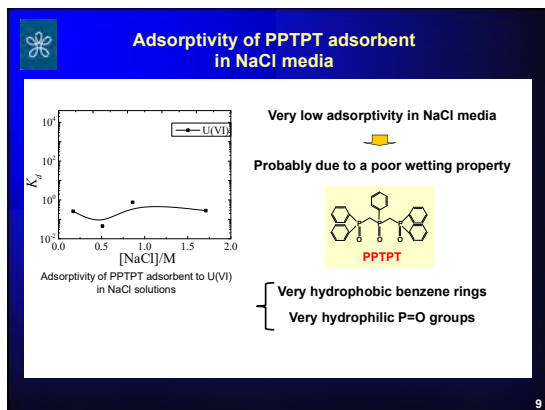
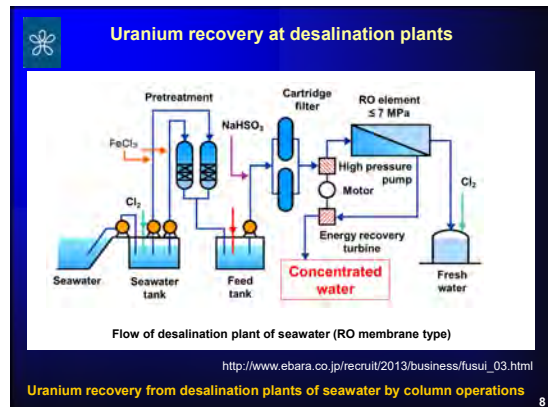
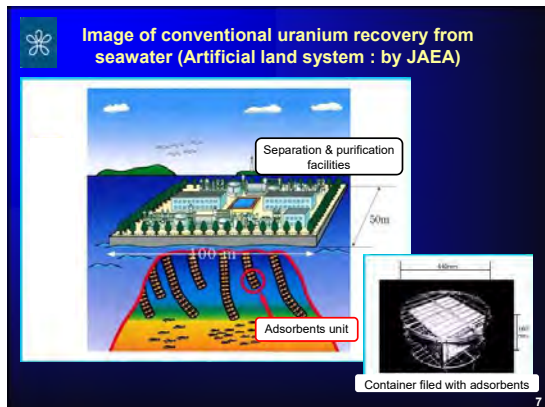
M. Nogami, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem 283, 541-546 (2010).

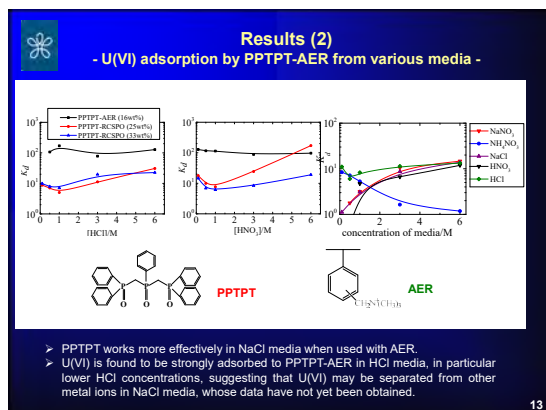
5

Typical conventional chelating resins developed for selective U(VI) recovery from seawater

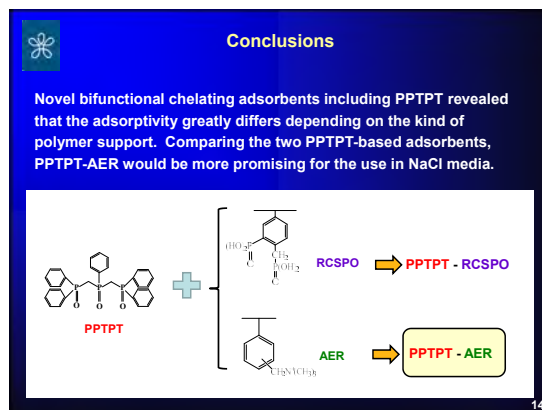
Tannin Amidoxime resins Resins with phosphono groups

6





13



14

質疑応答

Q：ORTEP 図で $\text{P}=\text{O}$ は分子内に 3 つあるが、一つウラニルとの結合に寄与していないように見える。しかし、 $\text{P}=\text{O}$ を安定化させるものがないはずはないので、平面内で錯形成ではなく $\text{P}=\text{O}$ が水や水素結合によって安定化している可能性があるのではないか、ORTEP の表示の際にそれらの分子が単に消去されているという理解で良いか？

A：その考えであっていると思う。ただ、 $\text{P}=\text{O}$ の 3 つのうち 2 つの配位の組み合わせにはこれ以外もある。

2.10.2 胡 湘榕（長岡技科大）

「Development of Porous MoO₂ Pellet Target for ⁹⁹Mo/^{99m}Tc Generator」



Development of porous MoO₂ target for ⁹⁹Mo/^{99m}Tc generator

Xiangrong Hu, Tatsuya Suzuki

Department of Nuclear Technology, Nagasaki University of Technology

Background

Background

Technetium-99m (^{99m}Tc) is widely used in nuclear medicine.

Traditional ⁹⁹Mo production through ²³⁵U(n, f)⁹⁹Mo

Issue

Nuclear Non-Proliferation.

One of the Solutions

⁹⁹Mo Production by (n, γ) reaction



Figure 1 The neutron activation of ⁹⁸Mo to generate ⁹⁹Mo^[1]

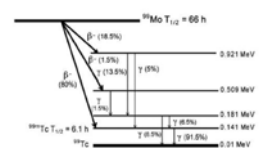


Figure 2 Decay scheme of ⁹⁹Mo and ^{99m}Tc^[2]

[1] COUNTELL N R. Medical isotope production without highly enriched uranium [J]. 2009.

[2] PELLAI M R A, DASH A, KNAAPP J R. Sustained availability of ^{99m}Tc: possible paths forward [J]. Journal of Nuclear Medicine, 2013, 54(2): 313-23.

Background

Table 1 Comparison of MoO₃ and MoO₂

Property	MoO ₃ (Molybdenum Trioxide)	MoO ₂ (Molybdenum Dioxide)
Chemical Formula	MoO ₃	MoO ₂
Appearance	Yellowish-orange solid	Black or dark brown solid
Water Solubility	1.066 g/L (18 °C), 4.90 g/L (28 °C), 20.55 g/L (70 °C)	Insoluble
Density (g/cm ³)	4.7	6.47
Melting Point (°C)	802	1100
Crystal Structure	Orthorhombic	Tetragonal

- MoO₃ is the most widely used target for neutron activation currently. This study explores the use of a **MoO₂ target, insoluble in water**, for ⁹⁹Mo/^{99m}Tc generator production.
- By irradiating porous MoO₂ and exploiting its **water solubility** disparity with ^{99m}Tc, efficient extraction can be achieved, and a low Mo/Tc Ratio is expected in this way.

Experiment method



Figure 3 The schematic diagram of manufacturing porous MoO₂ target flow chart

The porous MoO₂ target will be irradiated in KUR.

Condition:
Time: 20 min
Power: 5 MW
Neutron flux: 3×10^{13} n/(cm²·s)



Irradiated sample immersed in water to obtain the solution with **Tc-99m** and **Mo-99**.

Pellet

Table 2 Size of the obtained pellet

	Φ (mm) ¹	δ (mm) ²
Pellet	7.0	1.1

^{1,2} Diameter and thickness

Porous MoO₂ pellet

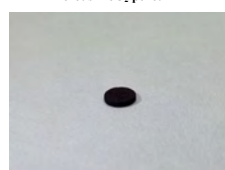


Figure 4 Porous MoO₂ pellet was produced

Result of XRD



Figure 5 The characterization of XRD for MoO₂ porous pellet

Results of SEM



Figure 6 This is the microscopic image of the pellet observed in SEM before and after pores formation: (a) Pellet before elution at 30 magnifications; (b) Pellet after elution at 30 magnifications;

7

Irradiation



Figure 7 γ -ray spectrum of the irradiated solution sample by HPGe-detector.

8

Water extraction

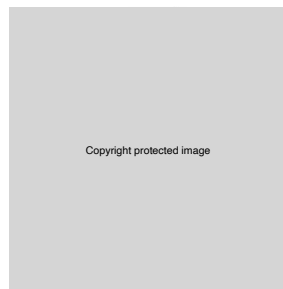


Figure 8 The schematic diagram of water extraction

9

- After irradiation, the MoO_2 is placed in a chromatography column with a 1:50 volume ratio of water.
- After 2 hours of contact, the liquid is collected and subjected to gamma spectroscopy using an H-Ge detector to measure the peaks corresponding to Mo and Tc isotopes.

Table 3 Activity results from HPGe-detector of solution and solid samples, and the extraction ratio in percent of Tc-99m and Mo-99



Table 4 Mass concentration of MoO_2 in solution by measurement of ICP-MS



↓
low Mo/Tc Ratio

Conclusion

- Innovative Method: Developed a novel $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ generator production method using the (n,γ) reaction, representing a significant advancement in nuclear medicine.
- Water Extraction: Based on water extraction of ^{99m}Tc from irradiated porous MoO_2 target, ensuring a reliable and efficient source of the important ^{99m}Tc radioisotope.
- Low Mo/Tc Ratio: Achieved a low Mo/Tc ratio, minimizing ^{99}Mo impurities in the final ^{99m}Tc eluate. It emphasizes the practicability of utilizing the low-specific Tc-99m generated through the (n,γ) method.

11

Thank you for listening

12



Self-introduction

胡 湘榕 (HU XIANGRONG) D2
長岡技術科学大学 放射化学研究室 (鈴木達也先生研)
Graduated from University of South China(南華大学)

13

My Undergraduate Atomic Energy Education



University Background: Graduated from South China University, a pioneer in nuclear education since its inception in 1959.

Evolution: The institution has transformed into a leading center offering undergraduate programs in Nuclear Engineering & Technology, Radiation Protection & Nuclear Safety, Nuclear Chemical Engineering, and Nuclear Fuel Engineering & Nuclear Materials.

Coursework: Explored foundational subjects such as Nuclear Fuel Cycle, Radiochemistry, and Nuclear Medicine...

Focused on topics intricately linked to actinide elements and radiochemistry, establishing a profound connection to Nuclear sciences. Engaged in numerous student experiments, directly aligned with nuclear chemistry and nuclear detection, enhancing practical knowledge.

14

質疑応答

Q : Your samples are different from MoO_2 . I think MoO_2 is MoO_{2+x} or MoO_{3-x} .

A : Yes I think so.

Q : MoO_{2-x} and MoO_{3-x} has similar XRD peak with MoO_2 . Why do you think your sample is MoO_2 ? How do you confirm that your sample is MoO_2 ?

A : MoO_2 was made under Ar gas. My sample 's color was black. So, I think MoO_2 .

Q : Concerning the slide number 9: Tc was rinsed by water. Is it right? Produced Tc was extracted by water?

A : Tc-99m was extraction Tc-99m by water.

第3章 参加者名簿

以下の方々にご参加いただきました。ありがとうございました。

Table 3.1: 参加者名簿

白崎 謙次	東北大学	金属材料研究所
出光 一哉	東北大学	金属材料研究所
針貝 美樹	原子力環境整備促進・資金 管理センター	
尹 鳳	長岡技術科学大学	大学院工学研究科
胡 湘榕	長岡技術科学大学	大学院工学研究科
鈴木 達也	長岡技術科学大学	原子力システム安全工学専攻
木村 寛之	金沢大学	疾患モデル総合研究センター
鈴木 実	京都大学	複合原子力科学研究所
山村 朝雄	京都大学	複合原子力科学研究所
吉永 尚生	京都大学	複合原子力科学研究所
谷平 美紀	京都大学	複合原子力科学研究所
川端 祐司	京都大学	複合原子力科学研究所
菊地 友香 梨	京都大学	複合原子力科学研究所
中本 裕士	京都大学	大学院医学研究科
志水 陽一	京都大学	医学部附属病院
齋藤 巧	京都大学	原子核工学専攻
角山 雄一	京都大学	環境安全保健機構 放射線管理部門
藤本 裕之	京都大学	環境安全保健機構 放射線管理部門
吉村 崇	大阪大学	ラジオアイソトープ総合センター
阿部 穰里	広島大学	大学院先進理工系科学研究科
中川 幸洋	広島大学	理学部化学科量子化学研究室
永井 登馬	広島大学	理学部化学科量子化学研究室
井上 太智	広島大学	理学部化学科量子化学研究室
増田 康人	広島大学	大学院先進理工系科学研究科
野上 雅伸	近畿大学	理工学部 エネルギー物質学科
中井 英隆	近畿大学	理工学部応用化学科
芳賀 芳範	日本原子力研究開発機構	先端基礎研究センター
神戸 振作	日本原子力研究開発機構	先端基礎研究センター
新居 昌至	日本原子力研究開発機構	新試験研究炉推進室
矢板 毅	日本原子力研究開発機構	物質科学研究センター 量子ビーム科学研究部門
渡邊 大輔	日立 GE	原子力計画部 プラント計画グループ
星野 国義	日立 GE	福島・サイクル技術本部 燃料サイクル推進センタ
塚本 泰介	三菱重工業	総合研究所 化学研究部
島田 隆	京都大学	複合原子力科学研究所
深澤 哲生	日本核燃料開発株式会社	研究部
佐藤 哲也	JAEA	先端基礎研究センター
船坂 英之	(株) アトックス	東海営業所
山上 浩志	京都産業大学	理学部物理科学科
川崎 愛理	群馬大学大学院理工学府	電子情報部門

第4章 研究会の様子

プログラム順で、講演の様子を収録しました。(敬称略)

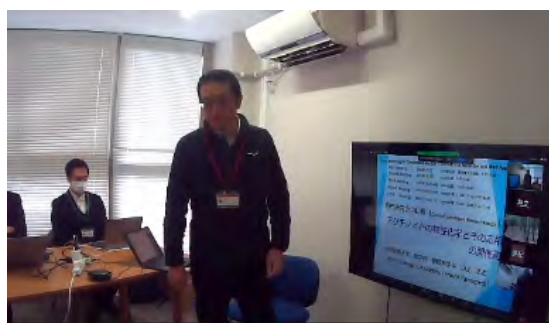


Fig. 4.1: 京都産業大学 山上 浩志



Fig. 4.2: 京大複合研 山村 朝雄



Fig. 4.3: 京大複合研 吉永 尚生



Fig. 4.4: 京大複合研 鈴木 実



Fig. 4.5: 東北大金研 白崎 謙次



Fig. 4.6: JAEA 新試験研究炉 新居 昌至



Fig. 4.7: 京大環境安全保健機構 角山 雄一



Fig. 4.8: 金沢大 木村 寛之

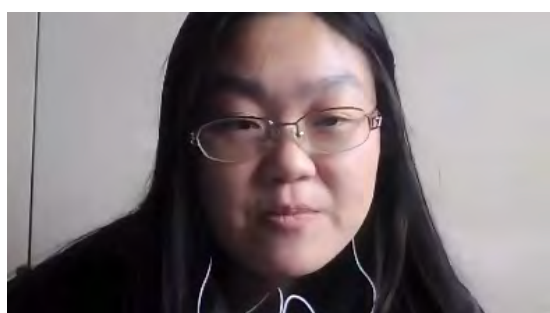


Fig. 4.9: 長岡技科大 尹 鳳



Fig. 4.10: アトックス 船坂 英之



Fig. 4.11: 東北大金研 出光 一哉

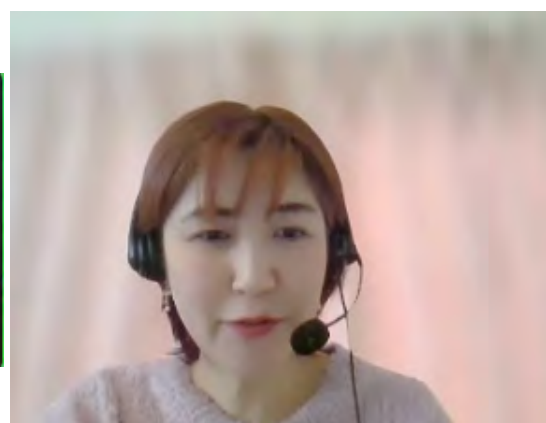


Fig. 4.12: 広大先進理工 阿部 穰里



Fig. 4.13: JAEA 先端研 神戸 振作



Fig. 4.14: NFD 深澤 哲生



Fig. 4.15: 京大複合研 島田 隆



Fig. 4.16: JAEA 物質研 矢板 毅



Fig. 4.17: JAEA 先端研 芳賀 芳範



Fig. 4.18: 群馬大 川崎 愛理



Fig. 4.19: JAEA 先端研 佐藤 哲也



Fig. 4.20: 京大医病院 志水 陽一



Fig. 4.21: 近大理工 野上 雅伸



Fig. 4.22: 長岡技科大 胡 湘榕

発行日	2024 年 3 月
編集・発行	京都大学複合原子力科学研究所 アクチノイド物性化学研究分野 電話：072-451-2442 〒 590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目